Федеральное агентство научных организаций РФ

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук (ИЯИ РАН)

УДК 539.1; 539.12; 539.123

№ госрегистрации 114102340016

Инв.№

УТВЕРЖДАЮ
директор ИЯИ РАН д.т.н.

Л.В.Кравчук

19 января 2016 года

ОТЧЁТ
О НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОЙ РАБОТЕ

МЕЖДИСЦИПЛИНАРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, ПРИКЛАДНАЯ ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА, РАДИОИЗОТОПНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, ЯДЕРНАЯ МЕДИЦИНА, ПРОБЛЕМЫ ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ БЕЗОПАСНОСТИ, ИНФОРМАЦИОННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ В ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКЕ

(промежуточный за 2015 год)

0031-2014-0070

Научный руководитель
заместитель директора по научной работе
д.ф.-м.н.

А.В.Фещенко
19 января 2016 года

Москва 2016

Федеральное агентство научных организаций РФ

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт ядерных исследований Российской академии наук (ИЯИ РАН)

УДК 539.1; 539.12; 539.123

№ госрегистрации 114102340016

Инв.№

УТВЕРЖДАЮ
директор ИЯИ РАН д.т.н.

Л.В.Кравчук

19 января 2016 года

ОТЧЁТ
О НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОЙ РАБОТЕ

МЕЖДИСЦИПЛИНАРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, ПРИКЛАДНАЯ ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА, РАДИОИЗОТОПНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, ЯДЕРНАЯ МЕДИЦИНА, ПРОБЛЕМЫ ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ БЕЗОПАСНОСТИ, ИНФОРМАЦИОННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ В ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКЕ

(промежуточный за 2015 год)

0031-2014-0070

Научный руководитель
заместитель директора по научной работе
д.ф.-м.н.

А.В.Фещенко
19 января 2016 года

Москва 2016

СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ

Руководитель темы д.ф.-м.н. А.В.Фещенко (реферат, введение, раздел 3, заключение)
19.01.2016

Исполнители темы:

д.ф.-м-н. Акулиничев С.В. (раздел 1)
19.01.2016

д.х.н. Жуйков Б.Л. (раздел 2)
19.01.2016

РЕФЕРАТ

Отчёт содержит: 52 с., 30 рис., 5 табл.

ЛУЧЕВАЯ ТЕРАПИЯ, ФОРМИРОВАНИЕ ПУЧКОВ, СОЧЕТАННОЕ ОБЛУЧЕНИЕ, РАДИОБИОЛОГИЧЕСКАЯ ЭФФЕКТИВНОСТЬ, ФАНТОМ, ИСТОЧНИК ИЗЛУЧЕНИЯ, ПРОИЗВОДСТВО ИЗОТОПОВ, ГЕНЕРАТОР ПОЗИТРОНОВ, РАДИОНУКЛИД, РАДИАЦИОННАЯ ЗАЩИТА, ИНФОРМАЦИОННОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ

В отчёте представлены результаты фундаментальных и прикладных работ, проведённых по государственному заданию в соответствии с планом научных исследований ИЯИ РАН на 2015 год. Из полученных результатов можно выделить следующие важнейшие результаты работ:

Разработка технологии протонной терапии. Предложен новый метод конформного формирования дозового поля протонной терапии, который позволяет уменьшить лучевые повреждения здоровых тканей при проведении протонной терапии опухолей. Данная технология применима для т.н. пассивного рассеяния при формировании дозового распределения для протонов и ионов. Для разработки и проверки данного метода была использована авторская программа Монте–Карло SRNA. ИЯИ РАН.

Разработка технологии производства нового источника для брахитерапии на основе иттербия. Получены активированные образцы новых иттербиевых источников для брахитерапии и совместно с ПИЯФ КИ проведены доклинические испытания источников с использованием культур раковых клеток. Исследования показали высокую радиобиологическую эффективность иттербиевых источников: наблюдалось отложенное по времени разрушение раковых клеток даже для сверхмалых доз от иттербиевых источников. ИЯИ РАН.

Внедрение новой технологии получения стронция-82. Успешно завершены работы по внедрению в центре ARRONAX (Нант, Франция) разработанной ИЯИ РАН технологии получения стронция-82 с использованием сорбции из облученного металлического рубидия. В рамках проведенных испытаний мишени из металлического рубидия были облучены высокоинтенсивным током протонов с энергией 70 МэВ, проведена переработка мишеней в горячей камере и получены препараты 82Sr большой активности. Данный метод, запатентован в России, Европе, Канаде и США и внедрён ранее в ГНЦ РФ-ФЭИ. ИЯИ РАН.

Разработка и внедрение медицинского генератора стронций/рубидий-82 для использования в ПЭТ в России и Европе. Совместно с французским центром ARRONAX и фирмой LEMER PAX разработаны различные модели генератора и внедрена методика его

изготовления с целью проведения в дальнейшем медицинских испытаний с использованием позитронно-эмиссионной томографией во Франции, России и других странах для диагностики кардиологических, а также некоторых онкологических заболеваний. ИЯИ РАН.

Получение α-активных радионуклидов для терапии онкологических заболеваний. Совместно с МГУ им. М.В. Ломоносова разработана методика одновременного выделения медицинских терапевтических α-активных радионуклидов 225Ac, 223Ra и 230Pa из мишени металлического тория, облученного протонами средних энергий. Методика включает жидкостную экстракцию, ионообменную и экстракционную хроматографию. Были получены образцы 225Ac, 223Ra и 230Pa из мишени, облученной на ускорителе ИЯИ РАН. Разработана методика мечения гидроксиапатита – перспективного биосовместимого носителя, радионуклидами 223Ra, определены кинетические характеристики и оптимальные условия проведения сорбции на различных текстурных формах. ИЯИ РАН.

Создание опытных образцов оборудования диагностики пучка для LEBT ЛУ-20 и HILAC, NICA. Завершено выполнение НИР по договору с ОИЯИ по теме «Создание опытных образцов оборудования диагностики пучка для LEBT ЛУ-20 и HILAC комплекса NICA ОИЯИ». В соответствии с Договором изготовлены компоненты, произведены сборка, юстировка, вакуумные испытания и доставка диагностических узлов заказчику. ИЯИ РАН.

Разработка, изготовление, лабораторные испытания, поставка и наладка измерителя продольного распределения заряда в сгустках для канала транспортировки из ускорителя Linac-4 в бустер. Изготовленное оборудование измерителя поставлено в ЦЕРН, проведена его сборка, лабораторные испытания и подготовка к установке на ускорителе. ИЯИ РАН.

Полученные результаты находятся на уровне лучших мировых или превышают их и представляют собой существенное продвижение в фундаментальных исследованиях природных явлений.

СОДЕРЖАНИЕ

Реферат 4

Введение 6

Основные результаты

1 Лаборатория медицинской физики 8

2 Радиоизотопные исследования 16

3 Разработка элементов ускорителей для Российских и зарубежных научных центров 48

Заключение 52

ВВЕДЕНИЕ

Исследования, направленные на развитие новых технологий ядерной медицины и лучевой терапии, являются приоритетной частью плана работ научных центров и университетов развитых стран от ЦЕРНа в Женеве до большинства местных университетов. Вложения средств в исследования по ядерной медицине и лучевой терапии рассматриваются в развитых странах как необходимый вклад в улучшение качества жизни населения. Уникальные характеристики линейного ускорителя протонов Института ядерных исследований РАН в г. Троицке дают возможность вести фундаментальные и прикладные исследования по ядерной и нейтронной физике, производить большинство изотопов медицинского назначения и проводить протонную терапию новообразований любой локализации. В настоящее время ускоритель обеспечивает пучки протонов с энергией от 100 до 220 МэВ (в проекте - до 600 МэВ) со средним током до 100 мкА (в перспективе – до 0,5 мА). В настоящее время это единственный действующий сильноточный ускоритель протонов средней энергии в РФ, имеющий оптимальную для терапии энергию протонов. Кроме того, пучки протонов ускорителя ИЯИ имеют все основные характеристики с оптимальными для протонной терапии значениями (диапазон энергий, частота и длительность импульсов, эммитанс). Кроме того, центр радиотерапии ИЯИ в Троицке позволяет проводить сочетанную лучевую терапию опухолей на ускорителях протонов и электронов в двух соседних процедурных помещениях. Исходя из опыта других ядерных центров и существующих тенденций в современной медицине, а также учитывая возможности имеющегося ускорителя протонов, сформировалась и реализуется программа исследований ИЯИ РАН для медицины. Одними из основных направлений этой программы исследований является протонная терапия, конформная лучевая терапия и внедрение новых источников для брахитерапии, обладающих радиобиологическими и эксплуатационными преимуществами.

В Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институт ядерных исследований РАН (ИЯИ РАН) эксплуатируется крупнейший в Европе и Азии линейный ускоритель. Особенностью этой уникальной установки является то, что имеется возможность ускорять протоны до сравнительно высоких энергий 500 МэВ (в настоящее время – 209 МэВ), при этом ускоритель обеспечивает высокую интенсивность (ток) пучка – реально до 140 мкА. В 1992 году была создана крупнейшая на тот момент в мире установка для производства изотопов на ускорителе (на отводке пучка протонов 160 МэВ), которая впоследствии регулярно модернизировалась, как и сам линейный ускоритель.

Получение медицинских изотопов на ускорителях для диагностики и терапии различных заболеваний имеет большое научное, технологическое и социальное значение. На линейном ускорителе получают в больших количествах важнейший медицинский радионуклид стронций-82 (используемый при изготовлении генераторов рубидия-82 для диагностики с помощью позитронно-эмиссионной томографии). Также, пока в небольших количествах, получают актиний-225, используемый при изготовлении генераторов висмута-213 для терапии онкологических заболеваний. Данные исследования направлены на развитие и улучшение существующих технологий получения стронция-82 и разработке новых технологий получения актиния-225, а также важных побочных продуктов – радий-223 и протактиний-230. Также в данных исследованиях разрабатываются, изучаются и совершенствуются генераторы 82Sr/82Rb, 225Ac/213Bi и 223Ra/211Pb, при эксплуатации которых получают короткоживущие медицинские радионуклиды, являющиеся продуктом радиоактивного распада долгоживущих.

В 2015 году проводились исследования на стенде источника поляризованных ионов водорода и дейтерия ИЯИ РАН и участие в создании источника поляризованных ионов для проекта НИКА (ОИЯИ), создавались приборы для целого ряда зарубежных научных центров.

ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

1 Лаборатория медицинской физики. Протонная и контактная терапия

Руководитель работ: д.ф.-м.н. С.В.Акулиничев.

Список исполнителей:

1. Асеев Владилав Николаевич (н.с.)
2. Гаврилов Юрий Краснославович (н.с.)
3. Гладун Нина Дмитриевна (вед. инженер)
4. Кузнецов Владимир Григорьевич (гл. инженер установки)
5. Лазебник Дмитрий Борисович (вед. инженер-электроник)
6. Михайлова Татьяна Сидоровна (аспирант)
7. Ольховка Сергей Владимирович (ст. инженер)
8. Печенин Юрий Васильевич (нач. службы)
9. Скоркин Владимир Михайлович (ст.н.с.)
10. Чаушанский Сергей Алексеевич (ст.н.с.)
11. Яковлев Иван Андреевич (аспирант)

1 РЕФЕРАТ

Целью работ в направлении развития протонной терапии в отчетном году было создание новой технологии индивидуального формирования дозового поля повышенной конформности. В отличие от других методов облучения опухолей протонами, в создаваемом нами методе не происходит существенного облучения за пределами облучаемого очага. Это достигается использованием гребенчатых фильтров новой конструкции из комбинированных материалов. Расчеты показали существенные преимущества нового метода по сравнению с использованными ранее. Целью работ по развитию методов контактной радиотерапии было исследование радиобиологических свойств иттербиевых источников собственного производства. Применение в брахитерапии иттербиевых источников взамен источников на основе кобальта и иридия позволяет снизить радиационное повреждение здоровых органов, т.е. повысить конформность радиотерапии. Возможность массового производства источников с изотопом Yb-169 с использованием наиболее рентабельной лазерной технологии в настоящее время имеется только в РФ благодаря уникальным технологиям лазерного разделения изотопов иттербия, впервые в мире реализованным в России.

В процессе выполнения НИР в отчетном году были получены следующие основные результаты:

1. Предложен новый метод конформного облучения в протонной терапии при пассивном формировании дозового поля. Проведенные расчеты по Монте-Карло показали его существенные преимущества по сравнению с другими используемыми методами.
2. Изготовлены иттербиевые источники для брахитерапии и проведены радиобиологические исследования с использованием этих источников и клеточного материала. Исследован отложенные по времени механизм разрушения раковых клеток излучением невысокой интенсивности от иттербиевых источников.
3. С использованием метода Монте-Карло исследован распространение исзлучения иттербиевых источников в различных тканях организма и в материалах биологической защиты.

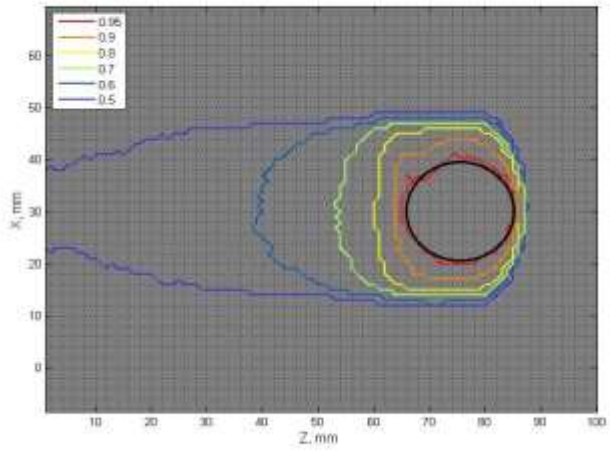
1 ВВЕДЕНИЕ

Исследования, направленные на развитие новых технологий ядерной медицины и лучевой терапии, являются приоритетной частью плана работ научных центров и университетов развитых стран от ЦЕРНа в Женеве до большинства местных университетов. Вложения средств в исследования по ядерной медицине и лучевой терапии рассматриваются в развитых странах как необходимый вклад в улучшение качества жизни населения. Уникальные характеристики линейного ускорителя протонов Института ядерных исследований РАН в г. Троицке дают возможность вести фундаментальные и прикладные исследования по ядерной и нейтронной физике, производить большинство изотопов медицинского назначения и проводить протонную терапию новообразований любой локализации. В настоящее время ускоритель обеспечивает пучки протонов с энергией от 100 до 220 МэВ (в проекте - до 600 МэВ) со средним током до 100 мкА (в перспективе – до 0,5 мА). В настоящее время это единственный действующий сильноточный ускоритель протонов средней энергии в РФ, имеющий оптимальную для терапии энергию протонов. Кроме того, пучки протонов ускорителя ИЯИ имеют все основные характеристики с оптимальными для протонной терапии значениями (диапазон энергий, частота и длительность импульсов, эммитанс). Кроме того, центр радиотерапии ИЯИ в Троицке позволяет проводить сочетанную лучевую терапию опухолей на ускорителях протонов и электронов в двух соседних процедурных помещениях. Исходя из опыта других ядерных центров и существующих тенденций в современной медицине, а также учитывая возможности имеющегося ускорителя протонов, сформировалась и реализуется программа исследований ИЯИ РАН для медицины. Одними из основных направлений этой программы исследований является протонная терапия, конформная лучевая терапия и внедрение новых источников для брахитерапии, обладающих радиобиологическими и эксплуатационными преимуществами.

1 ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

С использованием уникального оборудования Комплекса протонной терапии ИЯИ РАН в отчетном году были получены следующие основные научные результаты.

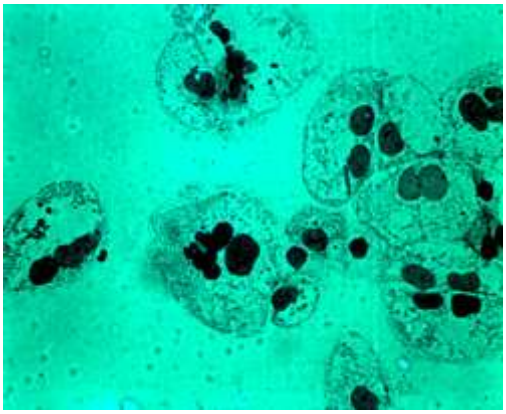
По направлению работ *Разработка технологии протонной терапии* был предложен новый метод конформного формирования дозового поля протонной терапии. Предложенная технология позволяет уменьшить лучевые повреждения здоровых тканей проведении протонной терапии опухолей. Данная технология применима для т.н. пассивного рассеяния при формировании дозового распределения для протонов и ионов, когда дозовое распределение формируется не за счет сканирования узкого пучка протонов или ионов, а за счет облечения мишени целиком широким индивидуально сформированным пучком. Для разработки и численной проверки данного метода была использована авторская программа Монте–Карло SRNA. На рисунке внизу показан пример рассчитанного дозового распределения для облучения мишени, обозначенной черным кругом. Как видно из рисунка, отсутствует обычное для такого вида протонной терапии заметное облучение тканей за пределами мишени, обозначенной черным кругом. При этом обеспечено облучение самой мишени однородной дозой заданной величины.



Следует отметить, что ранее в других центрах не удавалось получить столь высокую конформность облучения (соответствие формы мишени и распределения максимальной дозы) при использовании пассивного формирования дозового распределения. В ближайшем сеансе работы ускорителя протонов ИЯИ РАН на медицинский комплекс предполагается экспериментальная проверка нового метода.

По направлению исследований *Разработка технологии производства нового источника для брахитерапии на основе иттербия* были получены активированные образцы новых иттербиевых источников для брахитерапии и совместно с ПИЯФ КИ

проведены доклинические испытания источников с использованием культур раковых клеток. Исследования показали высокую радиобиологическую эффективность иттербиевых источников: наблюдалось отложенное по времени разрушение раковых клеток даже для сверхмалых доз от иттербиевых источников. На рисунке внизу показан пример микроскопирования клеток HeLa через 96 часов после облучения. Видны



морфологические признаки апоптоза фрагментация ядра при сохранении клеточной мембраны) в результате воздействия малых доз излучения Yb^{169}.

1. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для протонной лучевой терапии был предложен новый метод индивидуального формирования дозового поля, использующий комбинированные гребенчатые фильтры новой конструкции. Этот метод позволяет существенно повысить конформность и качество протонной лучевой терапии, особенно при облучении опухолей малого и среднего размеров. В области контактной лучевой терапии были исследованы радиобиологические свойства новых иттербиевых источников для брахитерапии собственного изготовления и обнаружены интересные эффекты отложенного по времени разрушения раковых клеток излучением иттербия небольшой интенсивности. Исследовано распространение излучения иттербия в различных тканях организма и материалах биологической защиты.

Эти научные результаты оригинальны и не имеют аналогов.

1 Список основных публикаций (2015 г.)

1. С.В.Акулиничев, В.И.Держиев, С.А.Чаушанский, А.А. Антанович, В.П.Филоненко, «Новый иттербиевый источник для брахитерапии с керамическим сердечником», «Медицинская физика», №1 (65) с.39.(2015).

2. С.В.Акулиничев, «Иттербий –перспективный радиоизотоп для брахитерпаии», Пленарный доклад на Троицкой Конференции по медицинской физике ТКМФ-6 (2014).

3. С.В.Акулиничев «Перспективы применения иттербиевых источников в брахитерапии», Пленарный доклад на X юбилейной Российской научной конференция «Радиационная защита и радиационная безопасность в ядерных технологиях» (ЦИПК Росатом,УДК 621.039ю58) Москва-Обнинск, сентябрь 2015 г., Сборник тезисов докладов, с.214-215.

4. С.В.Акулиничев, В.Н.Васильев, В.И.Держиев, Д.А.Коконцев и С.А.Чаушанский, «Перспективы использования иттербиевых источников для брахитерапии», Научно-практическая конференция «Импортозамещающие технологии в лучевой терапии злокачественных опухолей», РНЦРР, Москва, май 2015 г.

5. С.А.Артамонов, Ю.Н.Анохин, С.В.Акулиничев, С.А.Чаушанский, «Активационные и дозиметрические характеристики керамического источника на основе иттербия-169 для высокодозовой брахитерапии», Устный доклад на XIV Международной конференция « Безопасность АЭС и подготовка кадров», 25-27 ноября, Россия, г.Обнинск, Сборник тезисов , 2015. с. 170,

6. И.С.Тычкин, С.В.Акулиничев, Ю.Н.Анохин, С.А.Чаушанский,«Технология изготовления, кинетика активации и дозиметрические характеристики источника на основе иттербия-169 для низкодозовой брахитерапии», Устный доклад на XIV Международной конференция « Безопасность АЭС и подготовка кадров», 25-27 ноября, Россия, г.Обнинск, Сборник тезисов , 2015. с. 170,

7. S.V.Akulinichev, S.A.Chaushansky and V.I.Derzhiev, “Ytterbium advantages for Brachytherapy”, Устный доклад на Международной конференции International Conference on Medical Physics and Biomedical Engineering (ICMPBE-2015), Zurich , July 2015.

8. Andreev A.V., Mordovskoy M.V., Skorkin V.M. / The method of registration of solar cosmic rays by neutron detection / Доклад на LXV Международной конференции по ядерной физике “Ядро 2015”. 29 июня – 3 июля 2015 г., г. Санкт-Петербург. С. 282.

9. Skorkin V.M., Belyanski K.L., Skorkin A.V. / Monitoring system of radiation exposure proton linac / Устный доклад на LXV Международной конференции по ядерной физике “Ядро 2015”. 29 июня – 3 июля 2015 г., г. Санкт-Петербург.

http://www.onlinereg.ru/nucleus-2015. Принято к публикации в журнале "Ядерная физика и инжиниринг".

10. В.П. Крапивко, В.М. Скоркин / Экологическое состояние некоторых антропогенных радиационных аномалий Подмосковья/ Тезисы доклада на 10-ой Международной конференции «Ядерная и радиационная физика», 8–11 сентября 2015 года г. Курчатов, Республика Казахстан. Принято к публикации в материалах конференции. http://www.nnc.kz/

Интеллектуальная собственность:

1. Патент на Полезную модель «Низкодозовый иттербиевый источник» № 015149496/14(076142) от 18.11.2015г. Авторы: С.В.Акулиничев, А.А. Антанович, В.В.Бражкин, В.И.Держиев, И.П.Зибров, В.П.Филоненко, С.А.Чаушанский

2 Радиоизотопные исследования

Руководитель работы, заведующий лабораторией радиоизотопного комплекса, д.х.н. Б.Л.Жуйков

2 СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ

Ответственные исполнители:

Зав. сектором, канд. техн. Наук Ермолаев С.В.

Зав. Сектором Коханюк В.М.

Научный сотрудник канд. хим. Наук Чудаков В.М.

Исполнители:

Главный инженер установки Габриелянц Ю.Г.

Научный сотрудник Скасырская А.К.

Научный сотрудник канд. хим. Наук Лапшина Е.В.

Младший научный сотрудник Васильев А.Н.

Стажер-исследователь Остапенко В.С.

Инженер-экспериментатор Кобцев А.А.

2 РЕФЕРАТ

Отчет 35 с., 25 рис., 5 табл., 14 источников

РАДИОИЗОТОПНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

Объектом исследования являются продукты и процессы с образованием радиоактивных изотопов, которые происходят при взаимодействии протонов средних энергий с различными материалами. Целью работ является изучение закономерностей в этих процессах (в частности. при высокой интенсивности пучка протонов), разработка эффективных методов получения радионуклидов, в особенности, тех из них, которые могут использоваться в прикладных целях, в первую очередь – для медицинской диагностики и терапии. Методология работ состоит в том, что различные мишени облучают на линейном ускорителе ИЯИ РАН, изучаются и оптимизируются режимы и конструкция мишеней. Изучаются полученные продукты и разрабатываются методы радиохимического их выделения из облученных мишеней. Изучается возможность использования полученных радионуклидов для медицинского применения, в частности, с использованием генераторов изотопов.

Получены следующие основные результаты:

1. Продолжено изучение зависимости выходов стронция-82 от режима облучения рубидиевых мишеней при высоких токах протонного пучка и при различной форме и смещении пучка.

2. Исследованы характеристики генератора рубидия-82, изготовляемого на основе стронция-82 в РНЦ РХТ (С-Петербург) и ARRONAX GIP (Франция) с целью совершенствование генератора и инжекционной системы, используемых при диагностике кардиологических и онкологических заболеваний методом позитронной эмиссионной томографии (ПЭТ).

3. Проведены работы ИЯИ РАН совместно с МГУ им. М.В. Ломоносова по получению медицинских радионуклидов ^{223}Ra, ^{225}Ac и ^{230}Pa из мишени металлического тория, облученной протонами средних энергий. Изучены процессы в генераторе $^{225}\text{Ac} \rightarrow {}^{213}\text{Bi}$.

2 ВВЕДЕНИЕ

В Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институт ядерных исследований РАН (ИЯИ РАН) эксплуатируется крупнейший в Европе и Азии линейный ускоритель. Особенностью этой уникальной установки является то, что имеется возможность ускорять протоны до сравнительно высоких энергий 500 МэВ (в настоящее время – 209 МэВ), при этом ускоритель обеспечивает высокую интенсивность (ток) пучка – реально до 140 мкА. В 1992 году была создана крупнейшая на тот момент в мире установка для производства изотопов на ускорителе (на отводке пучка протонов 160 МэВ), которая впоследствии регулярно модернизировалась, как и сам линейный ускоритель.

Получение медицинских изотопов на ускорителях для диагностики и терапии различных заболеваний имеет большое научное, технологическое и социальное значение. На линейном ускорителе получают в больших количествах важнейший медицинский радионуклид стронций-82 (используемый при изготовлении генераторов рубидия-82 для диагностики с помощью позитронно-эмиссионной томографии). Также, пока в небольших количествах, получают актиний-225, используемый при изготовлении генераторов висмута-213 для терапии онкологических заболеваний. Данные исследования направлены на развитие и улучшение существующих технологий получения стронция-82 и разработке новых технологий получения актиния-225, а также важных побочных продуктов – радий-223 и протактиний-230. Также в данных исследованиях разрабатываются, изучаются и совершенствуются генераторы ^{82}Sr/^{82}Rb, ^{225}Ac/^{213}Bi и ^{223}Ra/^{211}Pb, при эксплуатации которых получают короткоживущие медицинские радионуклиды, являющиеся продуктом радиоактивного распада долгоживущих.

2 ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

2.1 Изучение процесса получения стронция-82 из мишеней металлического рубидия, облучаемого протонами средних энергий

2.1.1 Изучение процесса наработки стронция-82 на ускорителе ИЯИ РАН

В 2015 году проведено облучение 8 рубидиевых мишеней на линейном ускорителе ИЯИ РАН током высокой интенсивности с исходной энергией протонов 143 МэВ. При этом параметры облучения меняли с целью определения зависимости выхода стронция-82 от значения этих параметров – меняли смещение по оси Х (при том же смещении по оси У или, меняя смещение по У), а также меняли размеры пучка по Х и по У. Облученные мишени были направлены на радиохимическую переработку в ЛАНЛ, где определялся выход в каждой мишени, а также потери при химической переработке. Потери зависят от параметров облучения, так как в определенных случаях стронций необратимо сорбируется на внутренней поверхности оболочки и не может быть извлечен.

Дополнена зависимость выхода стронция-82 от смещения центра пучка по оси Х (включая точки по смещению +6 и +3 мм от центра). Показано, что при достаточно узком пучке смещение +6 мм приводит к падению выхода, но всего на 5%, если размер пучка невелик (параметр «распушенности» 12.5). При смещении на +3 мм выход остается максимальным, практически таким же, как и при смещении +2, т.е. 0,88-0,90 по фактору выхода (при факторе «распушенность» 16-18) . Фактор «распушенность» измеряли по графически измеренным размерам пучка, он не всегда удовлетворительно коррелирует с расчетами, полученными по температурным измерениям графитового коллиматора.

Показано, что при данной конструкции мишени и при быстром вращении пучка с определенными параметрами (сигма 2.3-2.6 мм, эллипс 5,5х4,6 мм, частота вращения пучка 4,85 кГц, частота повторения импульсов пучка 50 Гц, длина импульса – 200 мкс) повышение среднего тока до125 мкА не приводит к заметному снижению выхода. Однако, по данным ЛАНЛ это приводит к увеличению содержания примесей при растворенном рубидии, по-видимому, в результате более интенсивного взаимодействия металлического рубидия с материалом оболочки во время облучения.

Зависимость выхода стронция-82 от параметров облучения требует дополнительного изучения. В частности, будут получены новые экспериментальные данные и проведены расчеты по программе ANSYS.

2.1.2 Внедрение технологии получения стронция-82 на научно-производственном предприятии ARRONAX (Франция)

В рамках существующих Соглашений о научном сотрудничестве между ИЯИ РАН и ARRONAX GIP были проведены работы по усовершенствованию оборудования для выделения ^{82}Sr в горячих камерах ARRONAX по технологии ИЯИ РАН. Была облучена мишень на ускорителе протонов ARRONAX с энергией 70 МэВ с высоким током пучка, усовершенствована технология переработки мишеней новым способом, основанном на прямой сорбции стронция из жидкого рубидия.

Мишень была облучена согласно следующим параметрам:

- Средний ток пучка: 100 мкА
- Интегральный ток пучка 1300 мк·ч
- Продолжительность облучения 13 ч
- Окончание облучения 13.05.2015

При облучении не произошло сильного потемнения оболочки, что говорит об устойчивости мишени.

Рисунок 2.1 - Мишень металлического Rb, облученная на ускорителе ARRONAX.

Для выделения стронция мишень нагревали 3 ч при 330°C в локальной атмосфере аргона для обеспечения сорбции стронция на внутренней поверхности оболочки. Затем рубидий был откачан, а стронций смывали с внутренней поверхности следующим образом:

1) 3 мл H_2O, затем 6.5 мл 6M HNO_3 в течение 2 ч (97% стронция смыто);
2) 9.5 мл 4M HNO_3 ~12 ч (3% стронция смыто);
3) 9.5 мл H_2O ~2 ч (менее 0,5% стронция – предел обнаружения).

После этого полученный раствор стронция доочищали с помощью ионообменной хроматографии на колонках из Chelex 100, Dowex 1 и Dowex 50.

Откачанный рубидий переводили в окисленное состояние следующим образом:

Прокачка воздухом с расходом: 25 мл/мин в течение 15 мин. при 50-55°C;
100 мл/мин в течение 30 мин. при 50-55°C;
500 мл/мин в течение 30 ч при 50-55°C.

После коррекции процедуры была достигнута полная и безопасная нейтрализация.

Также была испытана нейтрализация сразу влажным аргоном (рис. 2.2).

Рисунок 2.2 - Стадии нейтрализации металлического рубидия аргоном.

Метод нейтрализации – сразу влажным аргоном был найден чересчур опасным, так как над металлическим рубидием, покрытым коркой, в этом случае образуется водный раствор гидроксида рубидия, который может затем бурно взаимодействовать с металлическим рубидием.

Продукты, образовавшиеся в мишени после облучения, приведены в табл.2.1.

Таблица 2.1 - Продукты, образовавшиеся в мишени после облучения на 05.06.15 (23 дня после окончания облучения).

Радионуклид	^{82}Sr	^{85}Sr	^{83}Rb	^{84}Rb	^{86}Rb
Активность, мКи	292	99.8	312 *	350	120

* Кумулятивная активность, включающая ^{83}Rb, образовавшийся из ^{83}Sr.

В результате этих экспериментов технология производства стронция-82 по методу ИЯИ РАН доработана и вполне готова к регулярному производству во Франции, что и будет осуществляться в ближайшее время.

2.2 Усовершенствование конструкции и методики изготовления медицинского генератора стронций/рубидий-82 для позитронно-эмиссионной томографии

В рамках действующих научных соглашений между ИЯИ РАН и РНЦРХТ Мнздрава РФ (г. Санкт-Петербург), ИЯИ РАН и ARRONAX GIP (Франция) продолжены работы по исследованию и улучшению характеристик разработанного в ИЯИ РАН генератора Sr-82/Rb-82, который внедряется в этих организациях для использования при кардиологических и онкологических заболеваниях методом позитронной эмиссионной томографии (ПЭТ). Также в данных организациях с участием ИЯИ РАН разрабатываются инжекционные системы для генератора. Для этого изучалась дозовая нагрузка при элюировании радиофармпрепарата (РФП) из генератора рубидия-82 и гидродинамические характеристики генераторной системы при различных скоростях элюирования.

2.2.1 Снижение дозовой нагрузки при диагностике

На основании оптимальных параметров введения радиофармпрепарата (РФП) на основе рубидия-82 при диагностировании методом ПЭТ, рекомендованных РНЦРХТ, определена радиационная нагрузка (мощность дозы гамма-излучения) на детекторы ПЭТ-сканера при диагностических процедурах при различных величинах диагностической дозы РФП (активность рубидия-82, вводимая в пациента), которая обусловлена остаточной активностью в пластиковом удлинителе. Показано, что максимальная величина активности рубидия-82 в пластиковом удлинителе (длина 75 см, внутренний диаметр 0.09 см) составляет ~1 мКи (38 МБк) при диагностической дозе 1300 МБк, вводимой в пациента за время 14 ± 3 с. На основании этого было рассчитано, что для обеспечения корректной работы ПЭТ-сканера максимальная толщина стационарной защиты из сплава на основе вольфрама должна быть ≤ 1.5 см при расстоянии между датчиком ПЭТ-сканера и пластиковым удлинителем с активностью ≥ 20 см.

2.2.2 Снижение гидродинамического сопротивления генераторной системы

По результатам клинических испытаний радиодиагностического средства, проведенных в РНЦРХТ, показано, что наиболее эффективно проводить элюирование в режиме постоянной скорости потока элюента. Скорость элюирования в зависимости от активности стронция-82 в генераторе меняли от 18 до 90 мл/мин в течение всего времени эксплуатации генератора рубидия-82. При этом гидродинамическое сопротивление генераторной системы увеличивается с 0,8 атм до 6-7 атм. Время элюирования для генератора с активностью по стронцию-82 от 160 до 20 мКи (от 5920 до 740 МБк) должно составлять 14 ± 3 с. Элюируемый объем радиодиагностического средства от 2 до 25 мл. В соответствии с требованиями при внутривенном введении ультра короткоживущих радиофармпрепаратов генераторного происхождения, генераторная система должна

состоять из последовательно расположенных генераторной колонки, двух стерилизующих фильтров и подводящих элюент и отводящих элюат (вводимый РФП) коммуникаций.

Уменьшить гидродинамическое сопротивление генераторной системы можно путем снижения сопротивления генераторной колонки, что достигается заменой используемой трубки генераторной колонки на трубку с большим внутренним диаметром.

Были изготовлены две различные генераторные колонки с внутренним диаметром генераторной колонки 7,5 мм и 9,4 мм, характеристические размеры которых приведены в табл.2.2. Указанные генераторные колонки не заряжались радионуклидом Sr-82.

Таблица 2.2 - Основные размеры генераторных колонок.

№ колонки	Внутренний диаметр трубки генераторной колонки, см	Площадь сечения трубки генераторной колонки, $см^2$	Длина трубки генераторной колонки, см	Объём генераторной колонки, $см^3$
1	0,75	0,44	2,7	1,2
2	0,94	0,71	2,7	1,9

Было измерено гидродинамическое сопротивление пустых колонок и таких же колонок с сорбентом при скорости подачи элюента (изотонический раствор) от 5 мл/мин до 200 мл/мин. Полученные результаты приведены на (рис. 2.3 и 2.4). Измерения показали, что во всем использовавшемся диапазоне скорости подачи элюента относительное уменьшение гидродинамического сопротивления колонки без сорбента составляет ~10% при переходе к колонке с трубкой большего диаметра (рис. 5), а в случае колонок с сорбентом на ~35%.

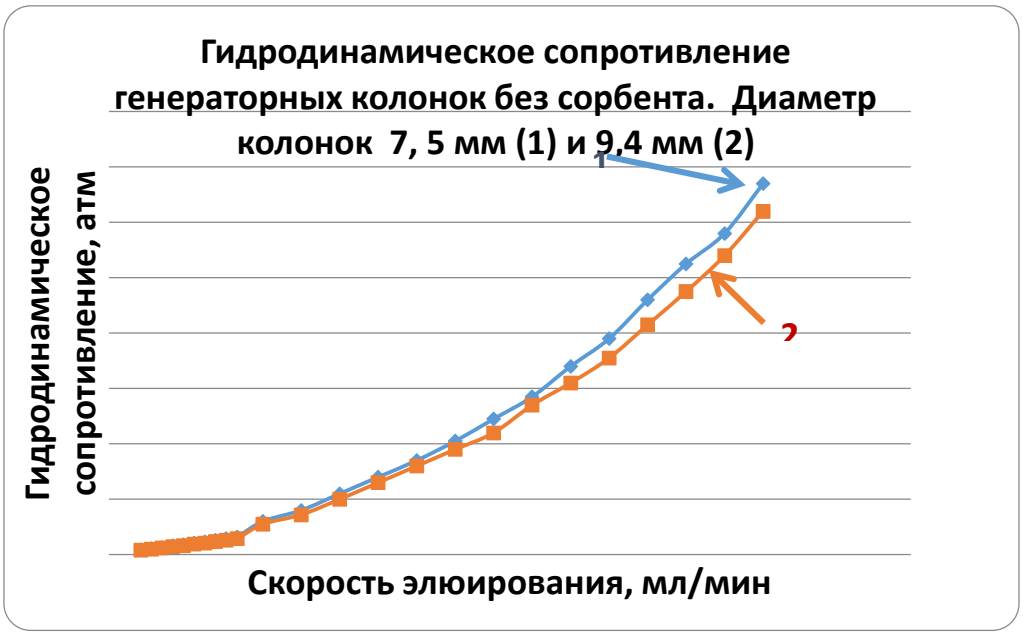


Рисунок 2.3 - Гидродинамическое сопротивление металлических компонентов генераторных колонок (колонок без сорбента)

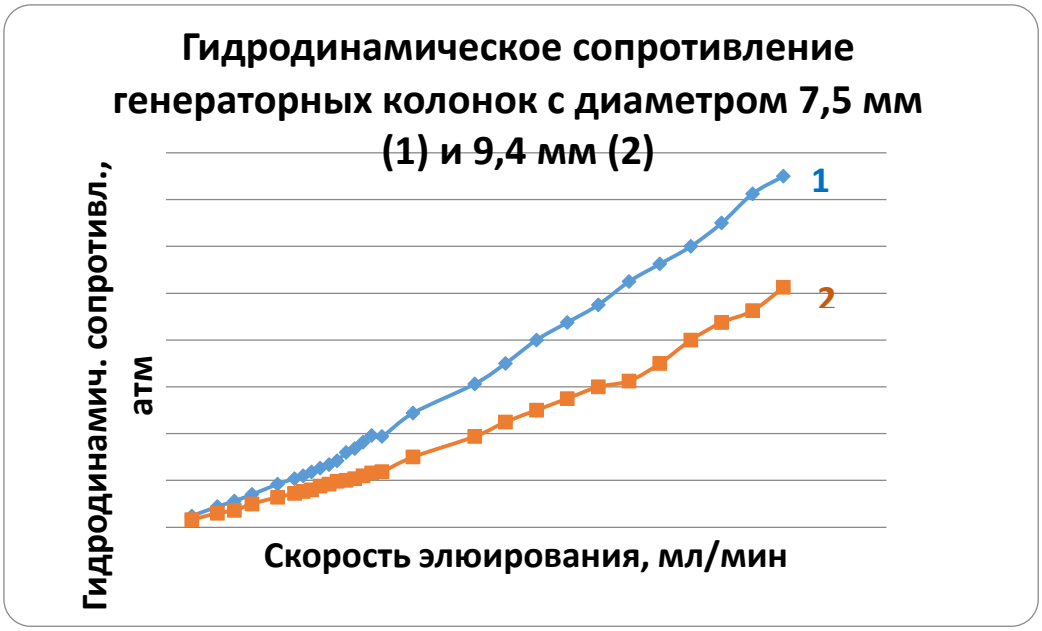


Рисунок 2.4 - Гидродинамическое сопротивление генераторных колонок с сорбентом

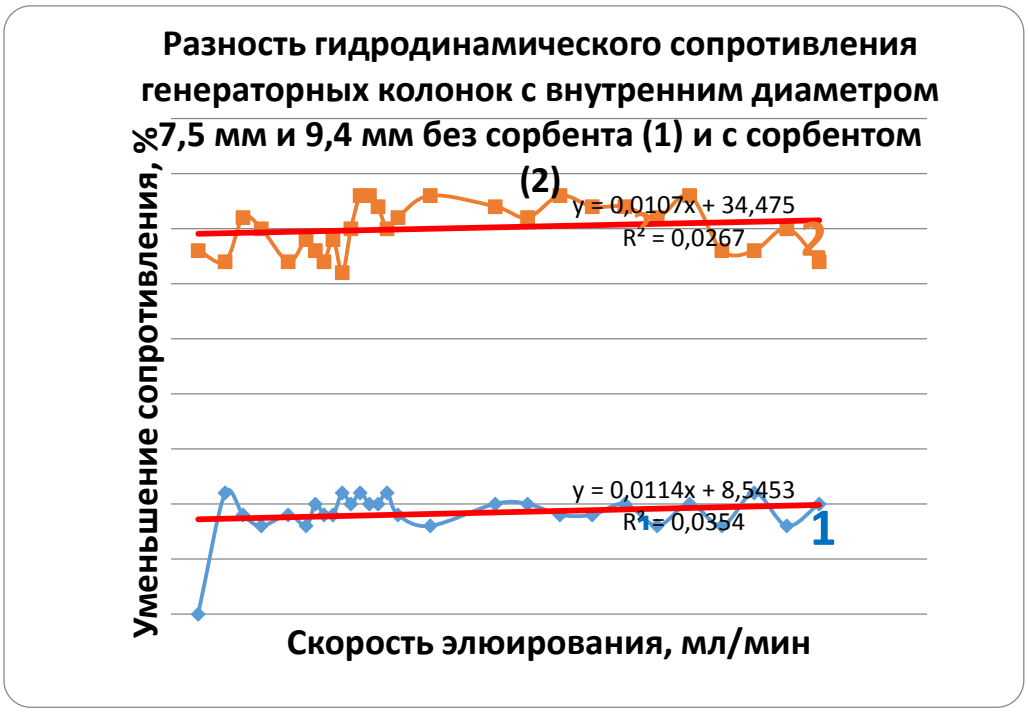


Рисунок 2.5 - Гидродинамическое сопротивление генераторных колонок с сорбентом.

2.3 Отработка методики сборки генераторной колонки и зарядки генератора рубидия-82 в горячей камере (Франция, Нант, ARRONAX)

В рамках действующего научного соглашения между ИЯИ РАН и ARRONAX GIP были изготовлены две генераторные колонки, которые использовали для изготовления двух генераторов (с активностью по стронцию-82 0.1 мКи и 11 мКи) и сравнительного изучения их характеристик.

В ходе изготовления генератора с низкой активностью (0.1 мКи) совместно с персоналом ARRONAX GIP была отработана методика сборки генераторной колонки и зарядки генератора стронцием-82, проведены два рабочих семинара, высказано предложение о введении дополнительного тестирования в процессе сборки генераторной колонки, позволяющее исключить изготовление некондиционных генераторных колонок.

Генератор с активностью 0.1 мКи – это российский вариант генераторной колонки (рис. 6, слева) в защитном свинцовом контейнере (генератор ГР-02). Зарядку генератора проводили в вытяжном шкафу с ламинарным потоком и дополнительной радиационной защитой (рис. 2.7).

Второй генератор с активностью 11 мКи – это генераторная колонка (рис. 6, справа), аналогичная российской, но размещенная в вольфрамовом защитном контейнере (конструкция и изготовление LEMER PAX, Франция). Этот генератор впервые изготовили в горячей камере в строгом соответствии требованиям радиационной безопасности, действующим на территории Франции (рис. 8). Цель работы состояла в определении наиболее оптимального расположения компонентов установки для зарядки генератора в ограниченном пространстве горячей камеры.

По результатам проделанной работы отмечена необходимость выделения постоянного места для сборки и тестирования генераторной колонки в процессе её сборки, разработки конструкции и изготовления стендов для проведения этих работ, а также зарядки генератора стронцием-82 в горячей камере и его тестирования.

Рисунок 2.6. Генераторные колонки на фланце (слева – для генератора ГР-02, ИЯИ РАН; справа – для генератора с вольфрамовым защитным контейнером LEMER PAX)

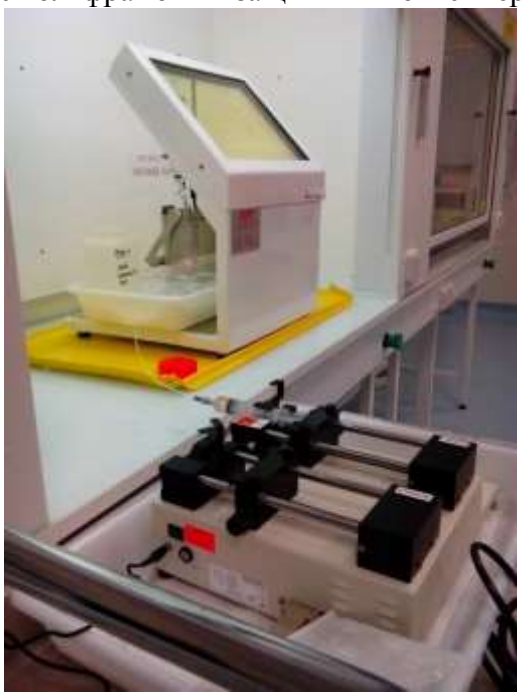


Рисунок 2.7 - Зарядка в ламинарном шкафу. Вариант генератора ГР-02 (ИЯИ РАН)

Рисунок 2.8 - Зарядка генератора в горячей камере. Генератор - в защитном вольфрамовом контейнере LEMER PAX.

2.3.1 Исследование долговечности генератора рубидия-82 с разными конструкциями колонки

Для изучения зависимости между конструкцией колонки генератора рубидия-82 и максимальным возможным периодом ее эксплуатации были изготовлены, собраны и заряжены стронцием-82 четыре генераторных колонки, отличающиеся длиной трубки генераторной колонки, сечением внутреннего объема генераторной колонки и его объемом. Фиксация трубки генераторной колонки осуществлялось с помощью стандартных муфт и фриттов производства Swagelok. Подвод элюента и отвод элюата проводили через стандартные трубки с внутренним диаметром 1,6 мм. Характеристики изготовленных генераторных колонок представлены в табл. 2.3.

Таблица 2.3 - Основные характеристики генераторных колонок

№ колонки	Диаметр колонки, см	Сечение колонки, $см^2$	Длина колонки, см	Объем колонки, $см^3$	Масса сорбента, г	Плотность сорбента, $г/см^3$
1	1,17	1,07	2,7	2,89	8,4	2,9
2	0,40	0,13	2,7	0,34	1,0	2,9
3	0,87	0,59	2,7	1,60	4,8	3,0
4	1,17	1,07	4,6	4,94	14,8	3,0

Колонки изготавливали и тестировали по стандартной запатентованной разработанной в ИЯИ РАН методике. Единообразие заполнения колонок сорбентом оценивали по гидродинамическому сопротивлению колонок и величине плотности сорбента (приведена в табл. 2.3). Все колонки были заряжены одинаковым количеством стронция-82 (~ 0,125 мКи). В связи с длительностью эксперимента окончание работы перенесено на первый квартал 2016 г.

2.4 Разработка и совершенствование метода получения актиния-225, радия-223 и протактиния-230 для терапии онкологических заболеваний

Для осуществления работ по изучению процессов выделения актиния-225, радия-223 и протактиния-230 из облученного тория в период 01-02.03.2015 была облучена экспериментальная ториевая мишень. В соответствии с договором, заключенным между ИЯИ РАН и МГУ им. Ломоносова (кафедра радиохимии), были проведены совместные работы по дальнейшему развитию технологии выделения.

2.2.1 Совершенствование хроматографических процедур для получения радиевой фракции высокой радионуклидной чистоты

Предложенная ранее схема выделения радия-223 одновременно с актинием-225 имеет возможности для усовершенствования с целью получения продукта более высокой чистоты. В прежней схеме очистку радия проводили с помощью катионообменной смолы Dowex 50x8 и экстракционно-хроматографического сорбента Sr Resin (TrisKem) (Отчет ЛРИК за 2014 г, раздел 3.4). Полученный указанным способом продукт содержит детектируемые (в сумме ~ 0,5%) примеси сурьмы и серебра. Проведено систематическое изучение сорбции сопутствующих радию продуктов облучения на Dowex 50x8 и Sr Resin.

Определены массовые коэффициенты сорбции основных ионов в элюате DGA Resin в зависимости от концентрации хлорной и винной кислот на Dowex 50x8 (Таблица

4). Винную кислоту использовали как реагент, образующий комплексы с сурьмой, которые не задерживаются смолой. Для определения влияния винной кислоты в сильнокислых средах на сорбцию провели три серии экспериментов:

- сорбция из хлорнокислых растворов в отсутствии винной кислоты ($[HClO_4] = 5 \cdot 10^{-3} – 4$ М);
- сорбция из растворов с постоянной концентрацией хлорной кислоты (1 М) и переменной концентрацией винной ($10^{-3} – 1$ М);
- сорбция из растворов с постоянной концентрацией винной кислоты (1 М) и переменной концентрацией хлорной (0,5– 4 М).

Установлено, что оптимальным для проведения сорбции Ra-Ba и элюирования Sb с колонки Dowex 50x8 является раствор, содержащий 0,5-1 М хлорную и 1 М винную кислоту. Кроме того, результаты статических экспериментов показывают, что указанным раствором отделяются также Cs, Ru и Te, в то время как Ag в форме Ag(I) остается на колонке.

Таблица 2.4 - Массовые коэффициенты распределения D_w некоторых ионов в зависимости от концентрации хлорной и винной кислотами на Dowex 50x8.

	D_w (Ra)	D_w (Ba)	D_w (Cs)	D_w (Sb)	D_w (Ag)	D_w (Ru)	D_w (Te)
0.005 М $HClO_4$	>5000	>1000	1169±83	53±5	>500	504±33	126±9
0.1 М $HClO_4$	4997±65	>1000	150±16	26±5	>500	298±13	27±5
0.5 М $HClO_4$	322±21	631±24	22±3	7±2	200±16	40±6	1±1
1 М $HClO_4$	137±14	155±11	8±1	4±2	42±25	28±6	3±2
2 М $HClO_4$	28±4	35±6	1±1	2±2	20±15	8±3	2±2
3 М $HClO_4$	16±4	16±2	1±1	2±1	27±14	5±2	4±2
4 М $HClO_4$	13±2	12±2	1±1	3±1	24±15	4±2	5±2
1 М $HClO_4$ + 1 М винная к-та	57±5	76±8	5±3	2±2	63±35	8±3	1±1
1 М $HClO_4$ + 10^{-1} М винная к-та	102±7	127±10	5±1	1±1	87±37	12±3	1±1
1 М $HClO_4$ + 10^{-2} М винная к-та	116±7	134±10	5±1	2±1	100±35	13±4	2±1
1 М $HClO_4$ + 10^{-3} М винная к-та	138±7	145±12	6±1	3±1	84±39	13±4	7±4
0.5 М $HClO_4$ + 1 М винная к-та	158±9	246±14	15±3	4±3	428±24	28±4	8±2
1 М $HClO_4$ + 1 М винная к-та	57±5	76±8	5±3	2±2	63±35	8±3	1±1
2 М $HClO_4$ + 1 М винная к-та	16±4	19±5	4±1	2±1	84±27	5±2	7±3
3 М $HClO_4$ + 1 М винная к-та	10±2	11±3	2±1	1±1	38±25	3±2	4±2
4 М $HClO_4$ + 1 М	9±2	7±3	1±1	1±1	36±24	2±1	4±2

винная к-та

Основываясь на полученных данных сорбции в статических условиях, исследовали различные варианты колоночного (динамического) разделения. В результате были определены оптимальные параметры выделения Ra-Ba фракции на Dowex 50x8 (Рис. 9). При пропускании исходного раствора и промывании колонки раствором смеси кислот (1 М $HClO_4$ + 1 М винная кислота) полностью элюируются Sb, Te, Cs, а также Nb. Затем раствором 2 М $HClO_4$ десорбируется >99% Ag, а Ba-Ra фракция, с примесями Ru и Ag (< 1%), элюируется 4 М $HClO_2$.

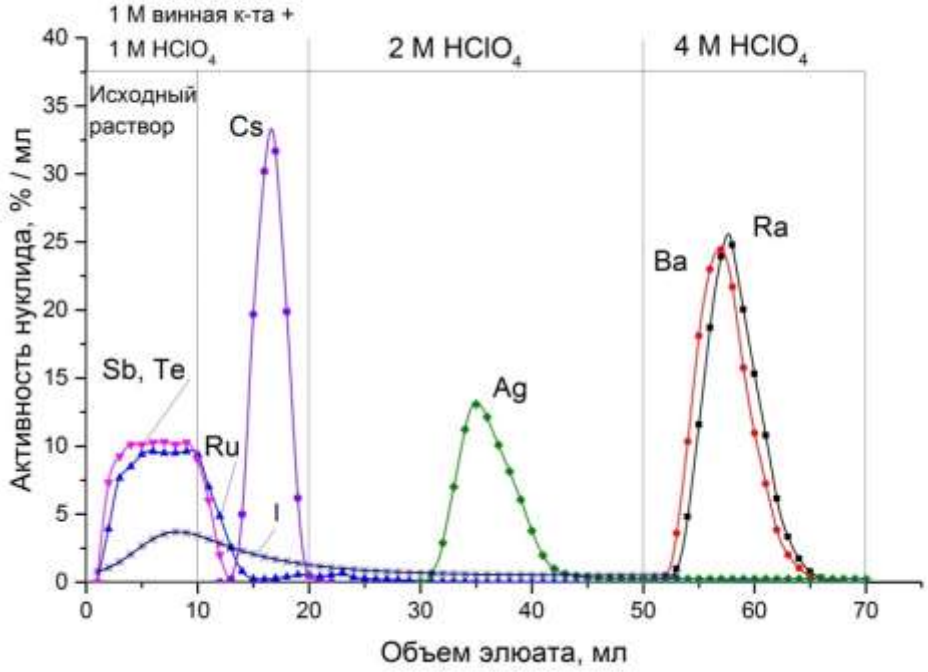


Рисунок 2.9 - Профиль элюирования радия и радионуклидных примесей с колонки Dowex 50x8. Исходный раствор – элюат DGA Resin в 1 М $HClO_4$ + 1 М винная к-та, $V_{сорб}$ = 2,0 мл, Ø = 6 мм, υ = 0,4-0,5 мл/мин.

Отделение радия от бария и окончательную доочистку от других радионуклидов проводили на сорбенте Sr Resin. Были проведены эксперименты по определению коэффициентов удерживания радия и сопутствующих ему катионов в статических условиях в широком диапазоне концентраций хлорной кислоты, т.к. опубликованные в литературе данные ограничиваются диапазоном 0,5-8 М. Полученные значения k` представлены на рис. 2.10.

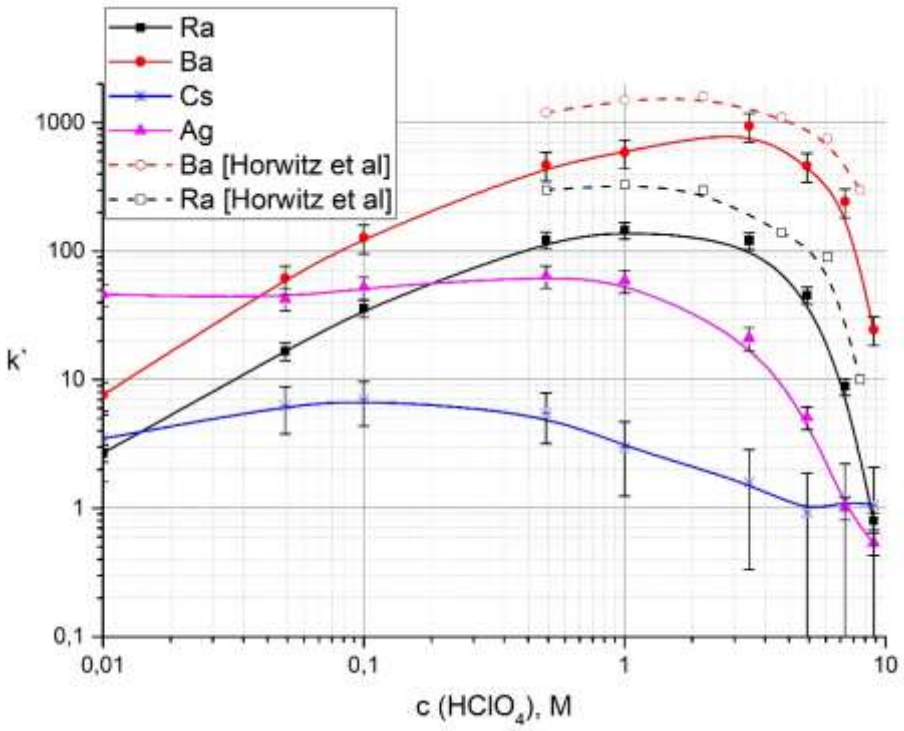


Рисунок 2.10 - Зависимости k` ионов Ba, Ra, Ag и Cs при сорбции на смоле Sr Resin от концентрации $HClO_2$. Штриховыми линиями показаны данные из работы Horwitz P. Radium Separation Method. // [57th Radiobioassay & Radiochemistry Measurements Conference Sandestin, Florida, 2011, p. 431-435].

Максимум удерживания радия и бария на Sr Resin соответствует 0,5-3 M $HClO_4$, причем для Ra максимальное значение k` превосходит $10^2$, а для Ba достигает $10^3$ свободных колоночных объемов. Te, Sb, I, La и Ru вовсе не проявляют сродства к сорбенту, что находится в соответствии с принципом соответствия размеров иона и краун-эфира. При этом цезий почти не сорбируется в этих условиях (k` < 10), а сорбция серебра снижается в данном диапазоне концентраций кислоты от нескольких десятков до единиц свободных колоночных объемов.

Указанные значения k` хорошо согласуются с литературными данными и позволяют предложить три варианта колоночного выделения радия:

- сорбция Ra (а также Ba и Ag) из 0,5-3 M $HClO_4$, затем элюирование радия концентрированным раствором хлорной кислоты;
- сорбция Ra (а также Ba и Ag) из 0,5-2 M $HClO_4$, затем элюирование радия 3 M азотной кислотой;
- сорбция Ra и Ba из 4 M $HClO_4$, элюирование серебра 4 M хлорнокислым раствором, затем десорбция радия 3 M азотной кислотой.

Основываясь на полученных данных сорбции в статических условиях, исследовали различные варианты колоночного разделения. Оптимальные параметры финишной

очистки, при которых получили радиевую фракцию с радионуклидной чистотой > 99.8%, представлены на рис. 2.11.

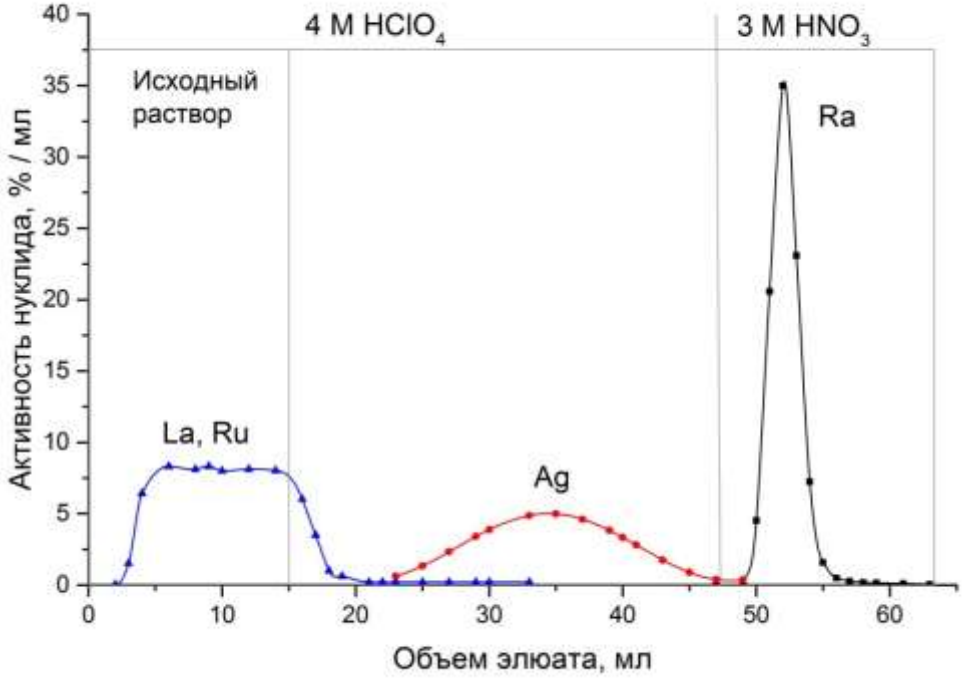


Рисунок 2.11 - Профиль элюирования радия и радионуклидных примесей с колонки Sr Resin. Исходный раствор – элюат Dowex 50x8 в 4 М $HClO_4$, $V_{сорб}$ = 2,5 мл, Ø = 6 мм, υ = 0,4-0,5 мл/мин.

В данном случае радийсодержащий раствор после разделения на Dowex 50x8 непосредственно подавали на колонку со Sr Resin. Колонку промывали раствором 4 М $HClO_4$ до полной десорбции серебра, при этом также отделялись остатки La, Ru и Te (Te не показан по причине крайне низкого содержания). Затем радий элюировали раствором 3 М HNO_3, а барий оставался на сорбенте.

2.2.2 Выделение радия-223 из органической фазы после экстракции тория

Поскольку после отделения тория ^{223}Ra накапливается из ^{227}Th, исследована возможность его реэкстракции из органических растворов Д-2-ЭГФК растворами хлорной кислоты (Табл. 5) с последующей доочисткой на Sr Resin.

Таблица 2.5 - Реэкстракция тория и сопутствующих продуктов его облучения из Д-2-ЭГФК (1:1 в толуоле) растворами хлорной кислоты. Погрешность составляет не более 5%.

	Th	Pa	Zr	Nb	Ce	Sb	I
0,1 М	< 1%	< 1%	< 1%	< 1%	89%	27%	24%
0,5 М	< 1%	< 1%	< 1%	< 1%	88%	47%	26%
1 М	< 1%	< 1%	< 1%	< 1%	100%	43%	26%
2 М	< 1%	< 1%	< 1%	< 1%	69%	47%	26%

5 М	< 1%	< 1%	< 1%	< 1%	100%	37%	25%
7 М	< 1%	< 1%	< 1%	< 1%	77%	6%	26%
9 М	< 1%	< 1%	< 1%	< 1%	11%	3%	23%

В широком диапазоне концентраций хлорнокислые растворы реэкстрагируют вместе с радием только церий, сурьму и йод и, таким образом, являются подходящими для проведения его реэкстракции. Это удобно еще и тем, что позволяет проводить концентрирование радия на Sr Resin, непосредственно подавая реэкстракт на колонку, заполненную сорбентом.

На Рис. 2.12 показан профиль элюирования радия и радионуклидных примесей с колонки Sr Resin. Реэкстракцию радия из органической фазы Д-2-ЭГФК проводили 2 М хлорной кислотой, а полученный раствор непосредственно подавали на колонку, которую затем промывали хлорной кислотой той же концентрации до прекращения элюирования йода. Сурьма и церий выходили с первыми порциями элюата.

Радий десорбировали 3 М азотной кислотой, общий объем фракции не превысил 10 мл. В полученном таким образом радии γ-спектрометрически не было обнаружено радионуклидных примесей, и радионуклидная чистота составила не менее 99,8%.

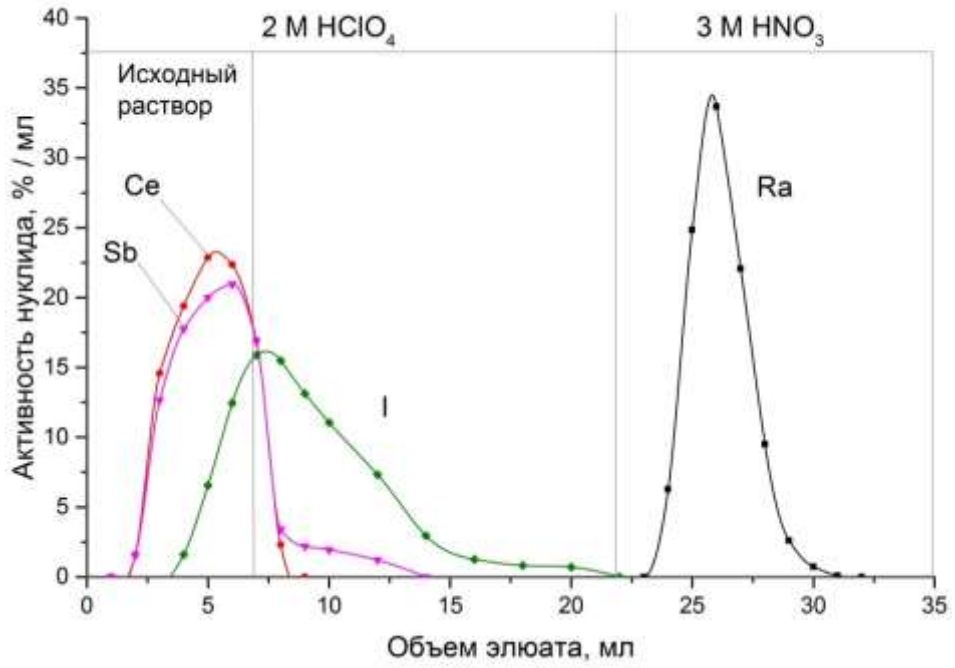


Рисунок 2.12 - Профиль элюирования радия и радионуклидных примесей с колонки Sr Resin. Исходный раствор – реэкстракт из органической фазы после ЖЖЭ Д-2-ЭГФК (1:1 в толуоле) в 2 М $HClO_4$, $V_{сорб}$ = 2,5 мл, Ø = 6 мм, υ = 0,4-0,5 мл/мин.

2.2.3 Оптимизация способа совместного выделения актиния-225 и радия-223 из облученного тория

На основании проведенных экспериментов предложена усовершенствованная методика одновременного выделения радия и актиния из облученной ториевой мишени. Принципиальная схема разделения представлена на рис. 13 и включает стадии:

-вскрытие и растворение мишени в 7 М HNO_3 с добавлением каталитического количества HF($< 10^{-2}$ М);

- отделение Th(IV) двукратной жидкость-жидкостной экстракцией раствором Д-2-ЭГФК в толуоле (1:1);

- выделение актиний-лантанидной фракции на колонке DGA Resin (сорбция радионуклидов из рафината в 6 М HNO_3, десорбция 0,01 М HNO_3);

- доочистка ^{225}Ac от лантанидов на колонке TRU Resin в 3 М HNO_3;

- выпаривание радийсодержащего элюата с колонки DGA Resin, растворение остатка в 1 М $HClO_4$ + 1 М винной кислоте;

- выделение Ra-Ba фракции из полученного раствора на колонке Dowex 50x8 (элюирование 1 М $HClO_4$ + 1 М винной кислотой, затем 2 М $HClO_4$ и 4 М $HClO_4$);

- доочистка ^{223}Ra от бария и следов серебра и рутения на колонке Sr Resin (колонка промывается 4 М $HClO_4$, ^{223}Ra десорбируется 3 М HNO_3);

- выдерживание органической фракции после отделения Th(IV) 21 день для накопления радия, который реэкстрагируют 2 М $HClO_4$;

- доочистка полученного реэкстракта ^{223}Ra (сорбируют на колонке со Sr Resin, а затем элюируют 3М HNO_3).

Таким образом, в результате переработки мишени по описанной методике можно получить в качестве продукта растворы нитрата актиния (III) и нитрата радия (II) в 3 М азотной кислоте.

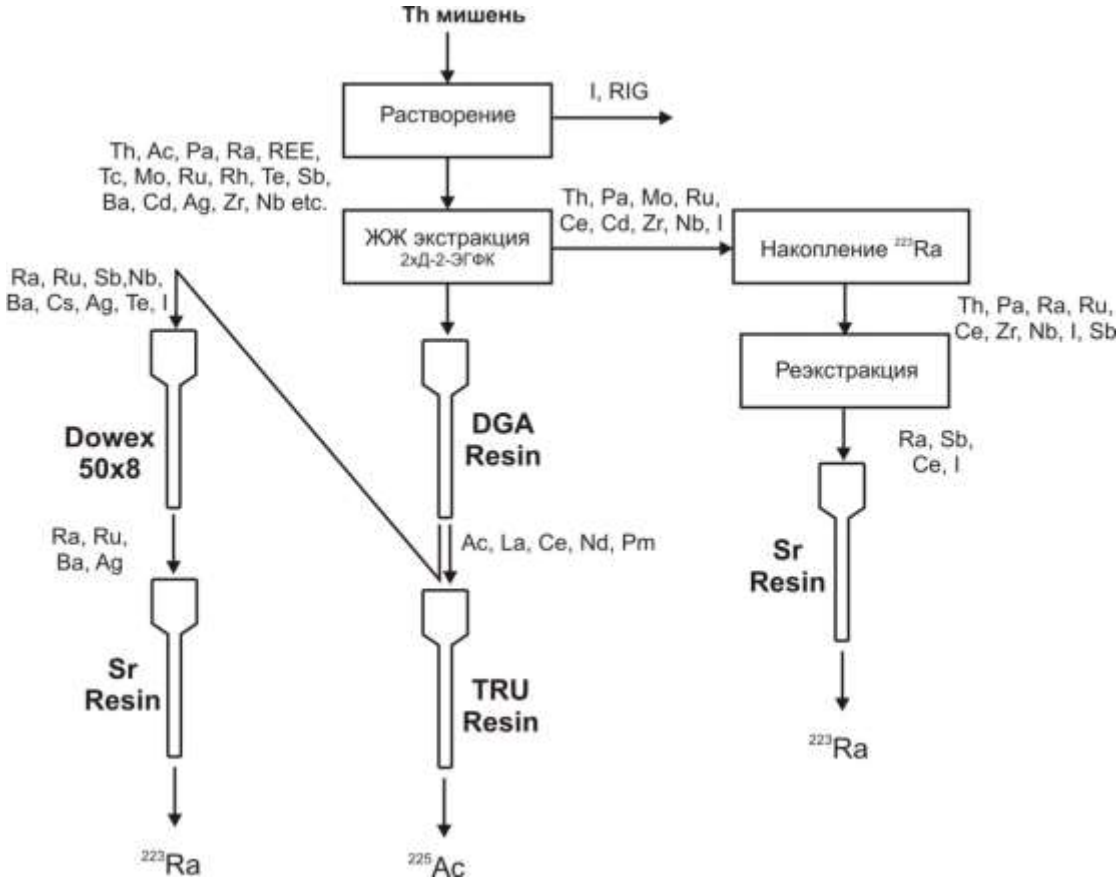


Рисунок 2.13 - Схема выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученной протонами ториевой мишени.

2.2.4 Сорбция и выщелачивание ^{223}Ra на частицах гидроксиапатита

Проведены эксперименты по разработке научных подходов к получению нового радиофармацевтического препарата на основе ^{223}Ra, в качестве носителя которого используются биодоступные и биоразлагаемые частицы гидроксиапатита (ГАП).

Определены кинетические характеристики и оптимальные условия проведения сорбции радионуклида на различных текстурных формах гидроксиапатита (варьировали размер частиц, их удельную поверхность и порозность), а также обратимость данного процесса в физиологической среде (0,9% раствор NaCl). В качестве сорбента выступали сферические гранулы ГАП ($ГАП_{сф}$), в том числе подвергнутые высокотемпературной обработке ($ГАП_{Т}$) и водная суспензия нанокристаллов ГАП. Кроме того, в ряде экспериментов^{223}Ra вводился непосредственно в процессе синтеза самого ГАП.

Установлено, что в условиях эксперимента максимальное извлечение радионуклида из водных растворов достигается при значении pH 5-7 (рис. 2.14) и соотношении твердой/жидкой фаз > 10 мг/мл (рис. 2.15).

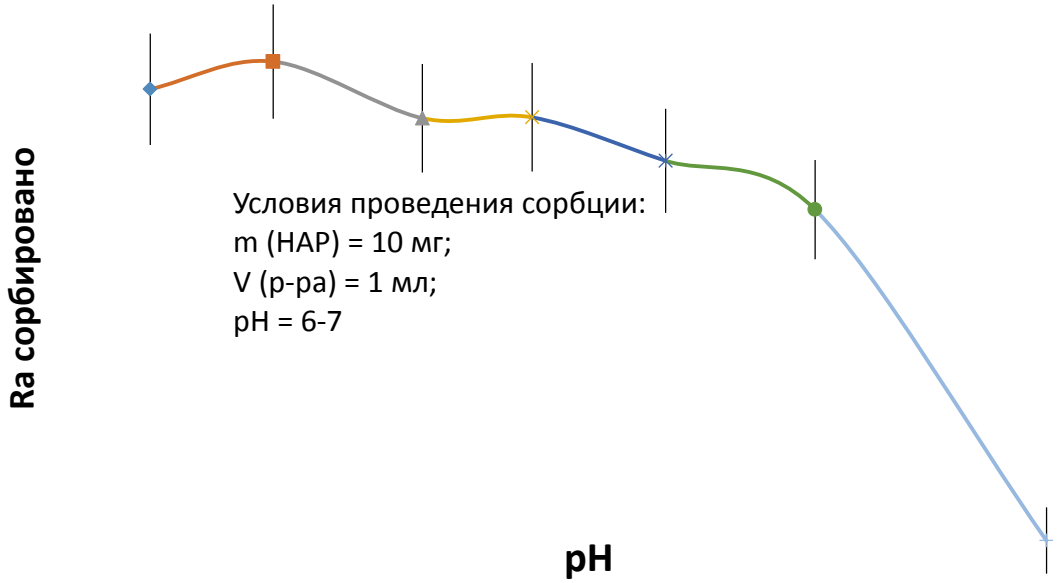


Рисунок 2.14 - Зависимость сорбции радия на ГАП от pH матричного раствора.

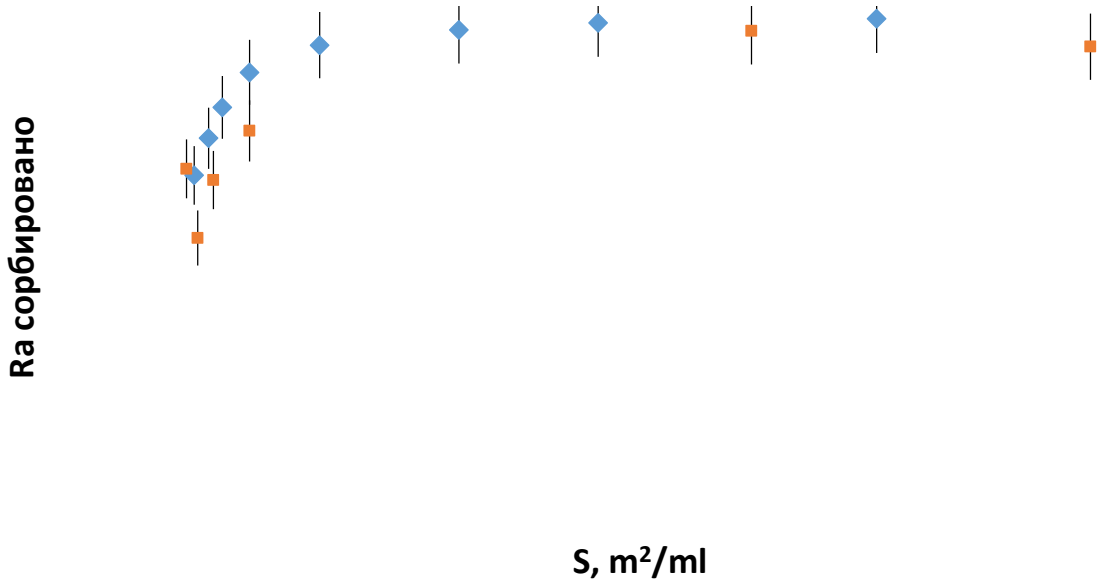


Рисунок 2.15 - Зависимость сорбции радия на ГАП от соотношения твердой и жидкой фаз. Сорбция на наночастицах показана синим, на сфероидах 350 мкм – красным цветом.

Частицы $ГАП_Т$ практически не сорбировали радий, в то время как гранулы $ГАП_{сф}$ за 2 ч извлекают более 80% (рис. 2.16). При этом в физиологическом растворе десорбция составила 50±5% (рис. 2.17). Динамику проникновения радия вглубь пористых гранул сорбента удалось визуализировать и оценить с помощью метода авторадиографии. Нанокристаллы ГАП уже в первые 10 минут извлекают почти 98% радионуклида (рис. 16), при этом степень десорбции падает до 8±5% (рис. 2.17). Введение ^{223}Ra в щелочную среду в процессе синтеза ГАП (pH~12) закономерно приводит почти к 100% извлечению

его из раствора. Однако степень десорбции в этом случае оказалась выше (15±5 %) (рис. 2.17), что возможно связано с образованием собственной фазы гидроксида радия и его последующим переходом в раствор. Во всех случаях степень десорбции можно понизить температурной обработкой (800-900^{0}C) сорбента с радионуклидом.

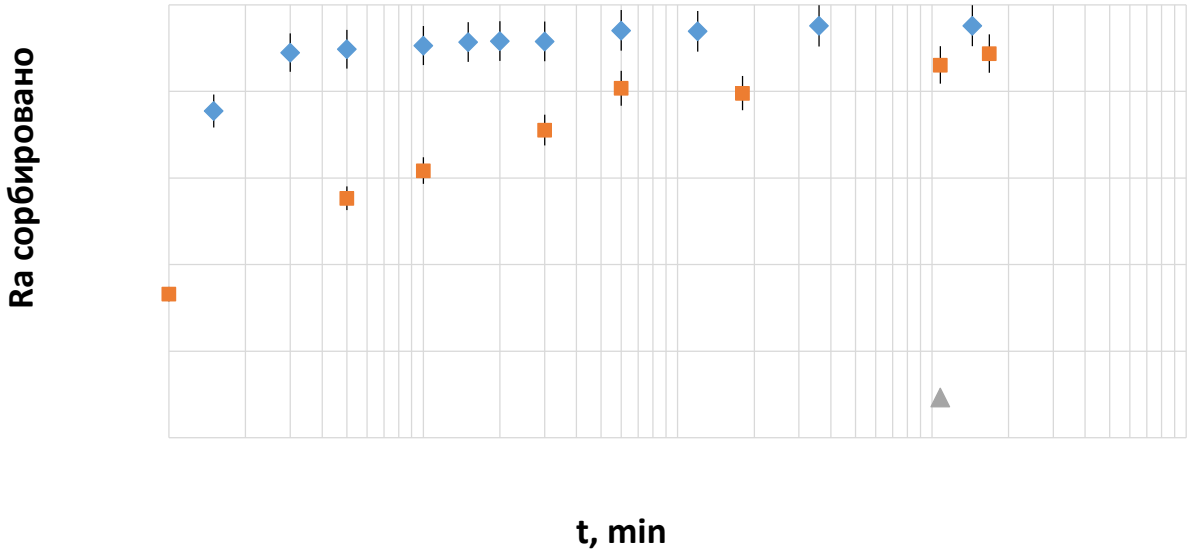


Рисунок 2.16 - Кинетическая зависимость сорбции радия на ГАП различного типа. Сорбция на наночастицах показана синим, на сфероидах 350 мкм – красным, а на сфероидах 350 мкм после отжига при 1200 ^{0}C – зеленым цветом.

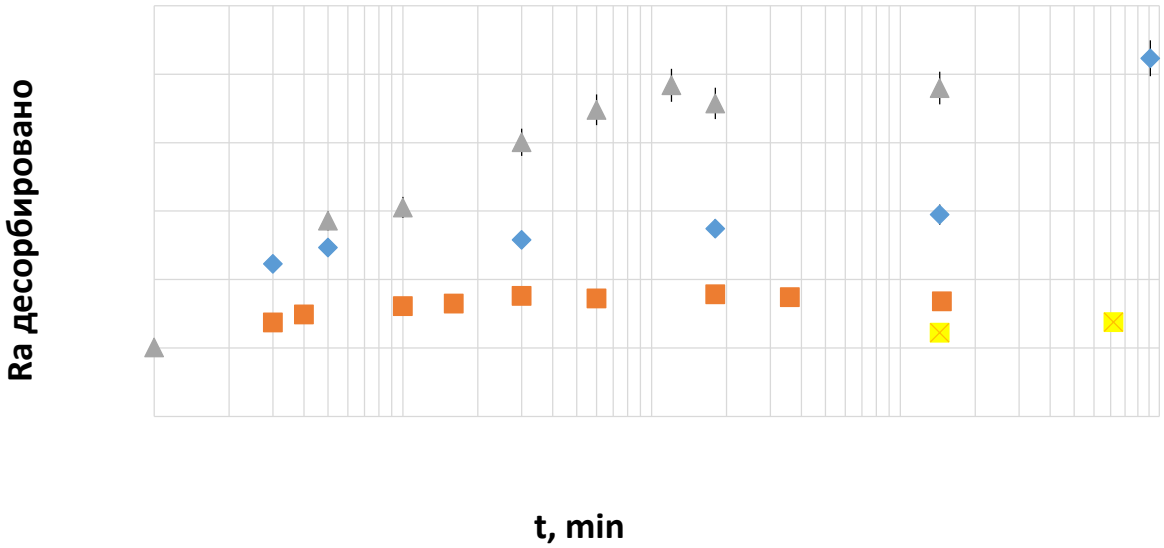


Рисунок 2.17 - Кинетическая зависимость десорбции радия с частиц НАР различного типа. Синим цветом обозначена десорбция радия с наночастиц, в которые радий вводили во время синтеза, красным - с наночастиц, на которых радий сорбировали из раствора, зеленым - десорбция со сфероидов 350 мкм, а желтым – со сфероидов 350 мкм, которые после сорбции отжигали при 900 ^{0}C.

2.2.5. Выделение ^{230}Pa из облученной ториевой мишени с учетом ранее разработанного способа совместного выделения^{225}Ac и^{223}Ra

^{230}Pa, наряду с ^{225}Ac и^{223}Ra, - перспективный для ядерной медицины альфа-излучатель. Около 8% ^{230}Pa распадается в ^{230}U (20,8 дн.), который является материнским радионуклидом в генераторной паре ^{230}U /^{226}Th (31 мин.), причем последний порождает быструю цепочку распадов с вылетом четырех альфа-частиц.

Была предложена схема выделения ^{230}Pa (рис. 18).

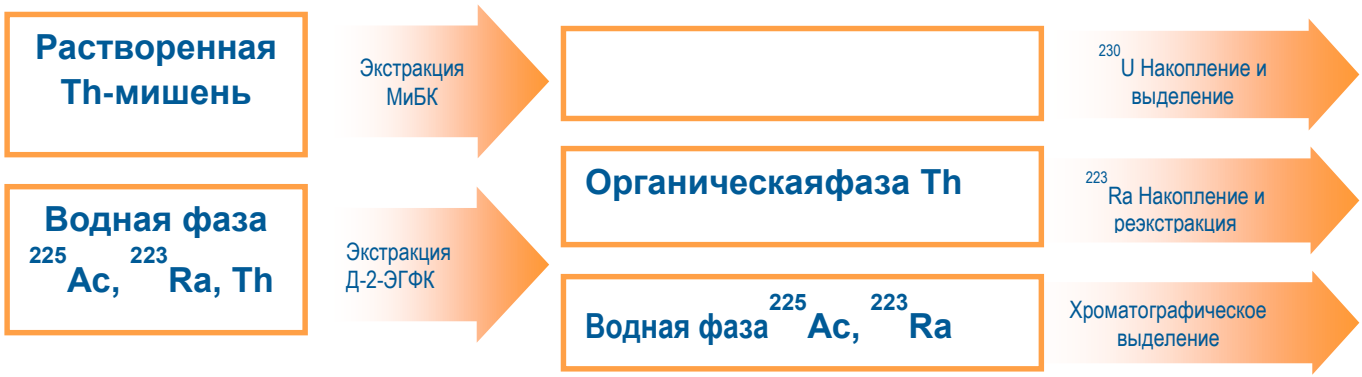


Рисунок 2.18 - Схема совместного выделения ^{225}Ac, ^{223}Ra и ^{230}Pa.

При выборе методики выделения ^{230}Pa в качестве отправной точки использовали разработанный ранее способ совместного выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra. Основное требование заключалось в том, чтобы выделение ^{230}Pa не ухудшало чистоту и выход ^{225}Ac и ^{223}Ra.

2.2.5.1 Экстракционное отделение протактиния

Изучена экстракция Pa из растворов тория, облученного протонами, в соляной кислоте различной концентрации. Экстракцию проводили в делительной воронке в течение 3-5 минут, расслаивание фаз длилось приблизительно 30 мин. Соотношение фаз 1:1. В органическую фазу, помимо Pa, переходили Sb, Nb и Ru (рис. 2.19). Обнаружено, что в растворе 5 М HCl достигается количественная экстракция Pa и наименьшее содержание примесей. Из водной фазы извлекали ^{225}Ac и ^{223}Ra по ранее разработанному способу.

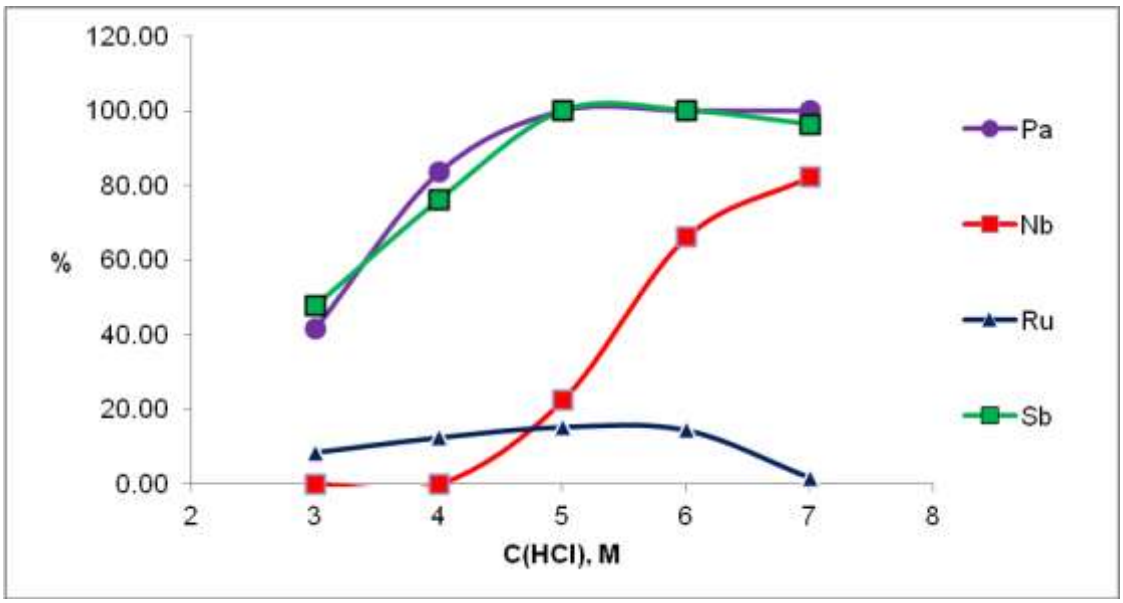


Рисунок 2.19 - Зависимость извлечения ^{230}Pa из солянокислых растворов.

Для очистки Pa от Nb органическую фазу дважды промывали 4 % раствором $C_2H_2O_4$ в 5 M HCl. Реэкстракцию Pa проводили 8 % раствором $C_2H_2O_4$, при этом в водную фазу переходят также небольшие количества (~1-2%) Sb и Ru. Для удаления Ru раствор упаривали с добавлением $HClO_2$.

2.2.5.2 Хроматографическое разделение протактиния и сурьмы

Окончательную очистку Pa от Sb проводили на анионообменной смоле AG 1x8. После удаления Ru остаток растворяли в 3 M HCl объемом 4 мл и пропускали через колонку, заполненную AG 1x8. Для вымывания Pa использовали также 3 M HCl. Кривая элюирования представлена на Рис. 2.20.

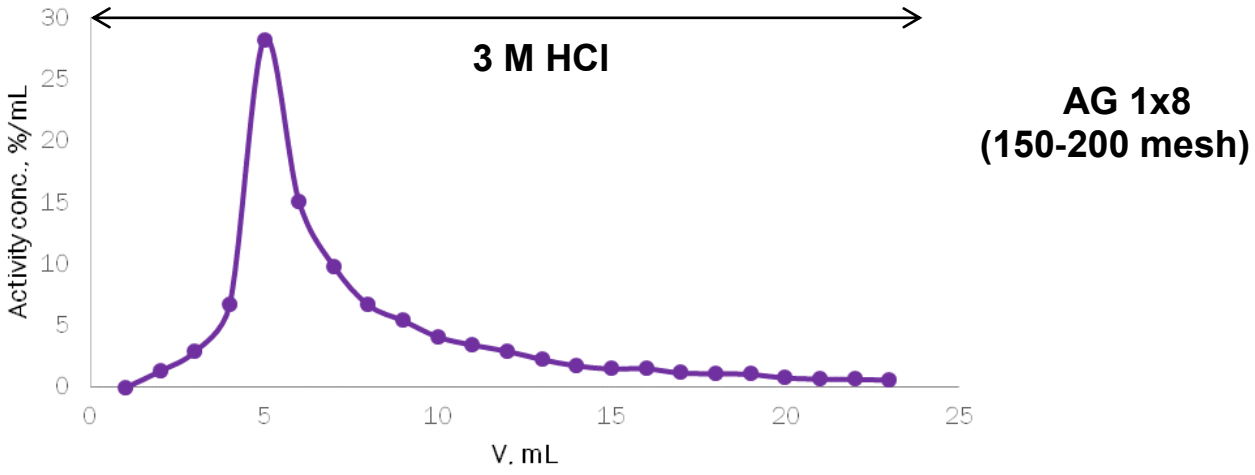


Рисунок 2.20 - Кривая элюирования Pa с колонки, заполненнойAG 1x8.

Радиоизотопы сурьмы остались сорбированными на колонке. Радионуклидная чистота выделенной протактиниевой фракции составила не менее 99%.

2.2.5.3 Определение коэффициентов распределения Pa в статических условиях на сорбенте DGA Resin

Экстракционно-хроматографические смолы перспективны как для разделения ^{230}Pa и ^{230}U, так и в качестве сорбента для генератора ^{230}U /^{226}Th. В то же время доступно немного литературных данных, часто противоречивых, по коэффициентам распределения Pa на таких сорбентах.

Были проведены эксперименты по изучению сорбции Pa на смоле DGA Resin (Triskem) в растворах азотной кислоты. Для этого к навескам сорбента (50 мг) добавляли 2 мл раствора HNO_3 соответствующей концентрации, содержащего Pa, и перемешивали в течение 3 часов. Полученные результаты в сравнении с литературными данными для U представлены на рис. 2.21.

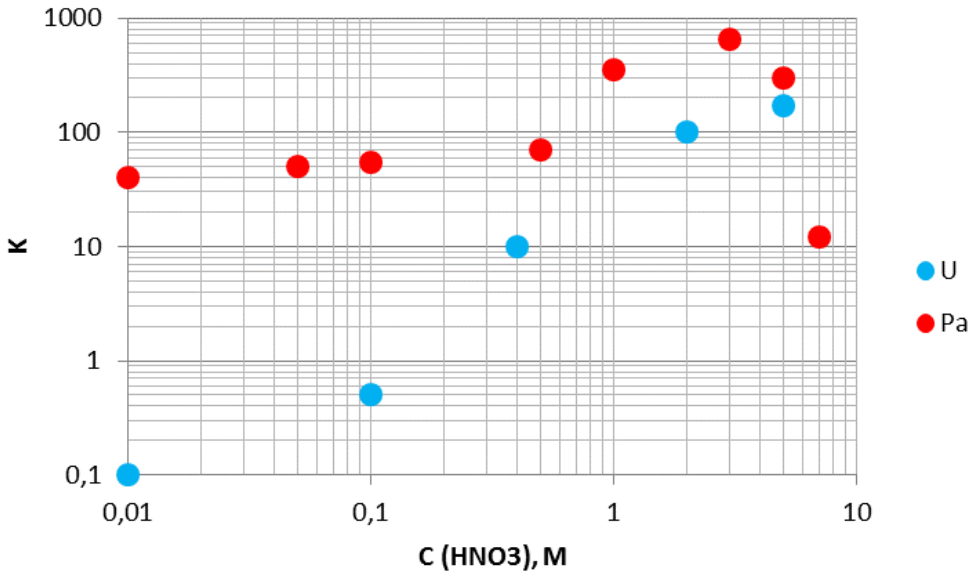


Рисунок 2.21 - Зависимость коэффициентов распределения U и Pa от концентрации HNO_3 на DGA Resin. ● - полученные данные для Pa, ● данные для U из работы E.P. Horwitz, P.R. McAlister, A.H. Bond, R.E. Barans. [Solvent extraction and Ion Exchange, 2005, v. 23, p. 219].

Как видно из рисунка, коэффициенты распределения со значениями в несколько сотен наблюдаются в диапазоне концентраций 1 – 5 М HNO_3 с максимумом в диапазоне 4-6 М HNO_3. В растворах с концентрацией > 7 М HNO_3 протактиний не образует комплексов с сорбентом DGA Resin, поэтому значения коэффициентов распределения резко падают.

Сравнение коэффициентов распределения для Pa и U показывают, что в диапазоне концентраций 0,01 – 1 М HNO_3 можно эффективно отделить их друг от друга.

2.2.6 Изучение режимов элюирования $^{225}Ac \rightarrow ^{221}Fr \rightarrow ^{213}Bi$ генератора

В настоящее время распространены $^{225}Ac/^{213}Bi$ генераторные системы, в которых ^{225}Ac фиксирован на катионообменной смоле типа Dowex-50, а ^{213}Bi смывают йодид-содержащими растворами. По сравнению с ними генератор, в котором ^{213}Bi получают в результате отделения и распада более короткоживущего ^{221}Fr, обладает преимуществами, а именно:

- для отделения ^{221}Fr требуется менее агрессивный элюент, чем йодид-содержащий раствор, что снижает химическую и радиолитическую нагрузку на сорбент с ^{225}Ac;
- ^{213}Bi находится в динамическом (вековом) равновесии с ^{225}Ac, но, благодаря непрерывному отделению ^{221}Fr, пространственно удален от ^{225}Ac и сконцентрирован в другом месте, например, на второй колонке. Таким образом, появляется возможность выбирать среду, в которой ^{213}Bi будет получен из генератора, что ведет к сокращению времени приготовления соединения, меченного ^{213}Bi.

Для оптимизации накопления и получения ^{213}Bi была разработана и экспериментально опробована математическая модель генератора радионуклидов типа $A \xrightarrow{\lambda_1} B \xrightarrow{\lambda_2} C \xrightarrow{\lambda_3}$, где λ_1, λ_2, λ_3 - постоянные распада. Согласно модели, материнский радионуклид А фиксирован на сорбенте, через который с объемной скоростью Q движется раствор, отделяющий промежуточный радионуклид В, распадающийся в целевой радионуклид С. В общем случае, скорости q_2 и q_3 движения В и С могут быть любыми в диапазоне $0 \le q_2, q_3 \le Q$. Обозначим $k = q_3 / q_2$.

В случае $q_2 \ge q_3$ объемная активность С в произвольном месте V объема элюата описывается следующими уравнениями.

В диапазоне $0 \le V \le kV_{e2}$:

$$\frac{dA_3}{dV} = \frac{\lambda_3 \lambda_2 A_1^0 e^{-\lambda_1 t_e}}{q_2\left(\lambda_3 - \lambda_1 - k\left(\lambda_2 - \lambda_1\right)\right)}\left(e^{-(\lambda_2-\lambda_1)\frac{V}{q_2}} - e^{-(\lambda_3-\lambda_1)\frac{V}{q_3}}\right) \qquad (1)$$

В диапазоне $kV_{e2} \le V \le V_{e2}$:

$$\frac{dA_3}{dV} = \frac{\lambda_3 \lambda_2 A_1^0}{q_2\left(\lambda_3 - \lambda_1 - k\left(\lambda_2 - \lambda_1\right)\right)}\left(e^{-(\lambda_2-\lambda_1)\frac{V}{q_2}} e^{-\lambda_1 t_e} - e^{-(\lambda_2-\lambda_3)\frac{V}{(q_2-q_3)}} e^{(k\lambda_2-\lambda_3)\frac{V_{e2}}{(q_2-q_3)}}\right) \qquad (2)$$

где

A_1^0 – исходная активность материнского радионуклида А;

t_e – длительность элюирования;

V_{e2} –объем, занимаемый радионуклидом B в общем объеме V_e элюата, пропущенного через сорбент за время t_e элюирования.

В случае $q_2 \le q_3$ профиль объемной активности C также состоит из двух диапазонов: $0 \le V \le V_{e2}$ и $V_{e2} \le V \le kV_{e2}$. Уравнение для первого диапазона совпадает с уравнением (1).

В диапазоне $V_{e2} \le V \le kV_{e2}$:

$$\frac{dA_3}{dV} = \frac{\lambda_3\lambda_2 A_1^0}{q_2\left(\lambda_3 - \lambda_1 - k\left(\lambda_2 - \lambda_1\right)\right)}\left(e^{\frac{(\lambda_3 - k\lambda_2)}{(k-1)}t_e} e^{(\lambda_2-\lambda_3)\frac{V}{(q_3-q_2)}} - e^{-\lambda_1 t_e} e^{-(\lambda_3-\lambda_1)\frac{V}{q_3}}\right) \qquad (3)$$

Модель позволяет рассчитать объемную активность радионуклидов B и C в любой точке элюата. На рис. 2.22 показаны профили объемной активности C, рассчитанные для различных значений *k*.

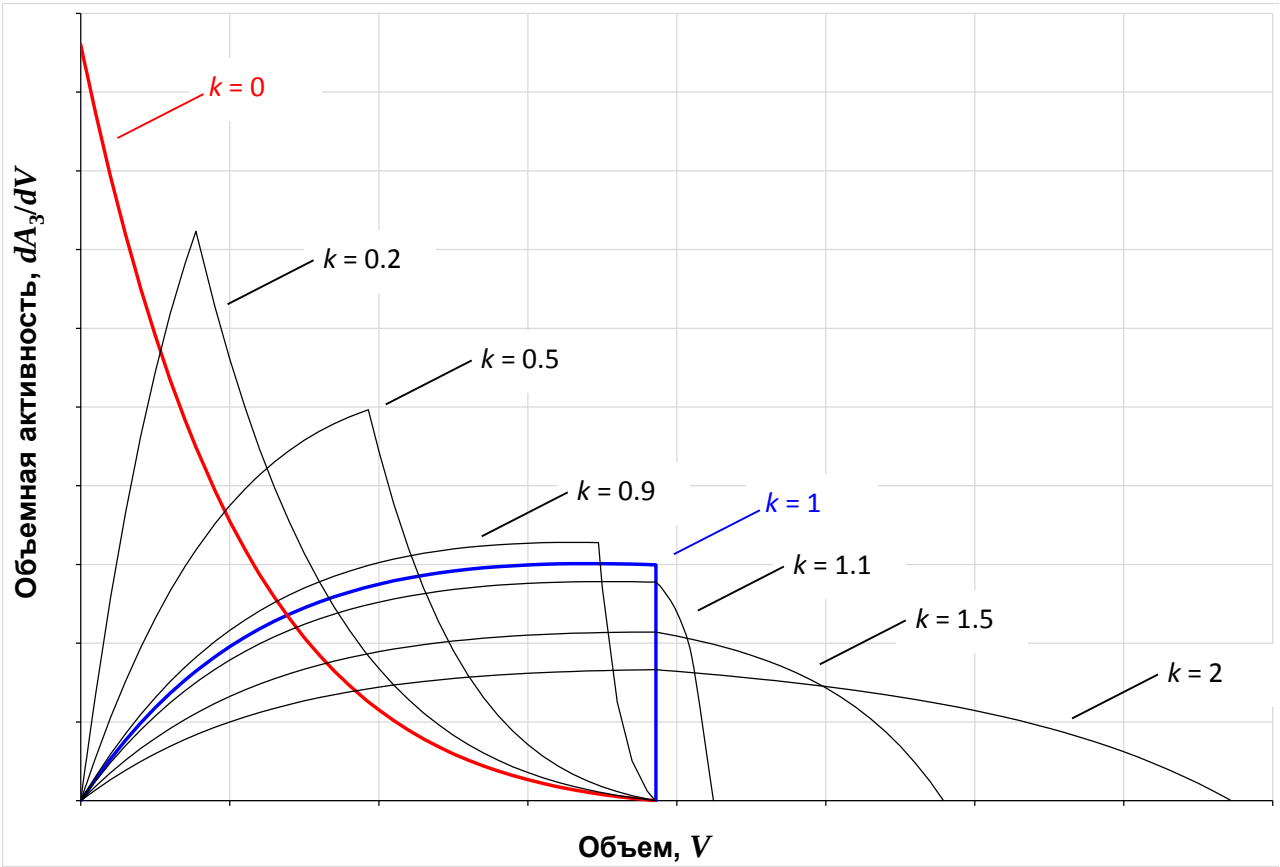


Рисунок 2.22 - Профили объемной активности C в зависимости от скоростей движения B и C. В расчете использованы λ_1, λ_2, λ_3 для ^{225}Ac,^{221}Fr и ^{213}Bi, соответственно; t_e = 20 мин; q_2 = 1,93 мл/мин.

Наиболее интересными с практической точки зрения являются два случая.

k = 0 (красная кривая на рис. 2.22): радионуклид C, образуясь, останавливается, например, сорбируется.

k = 1 (синяя кривая на рис. 2.22): радионуклиды B и C движутся в потоке элюата с одинаковой скоростью.

Кроме того, скорость движения q_2 франция во многих случаях (движение раствора по трубкам и в определенных условиях через сорбенты) можно считать близкой к скорости Q потока элюата.

2.2.6.1 Оценка коэффициента распределения Bi на Actinide Resin

Для экспериментальной проверки модели ^{225}Ac адсорбировали на колонке (H = 4,7 см, ø = 0,37 см), заполненной экстракционно-хроматографической смолой Actinide Resin (TrisKem). Были проведены эксперименты, в которых через колонку пропускали раствор 0.25 M HNO_3 с разными скоростями. Длительность элюирования была фиксированной (230 мин) и достаточно большой для достижения ^{213}Bi динамического равновесия с ^{225}Ac. Данные по активности ^{213}Bi, оставшегося на сорбенте, представлены на рис. 2.23.

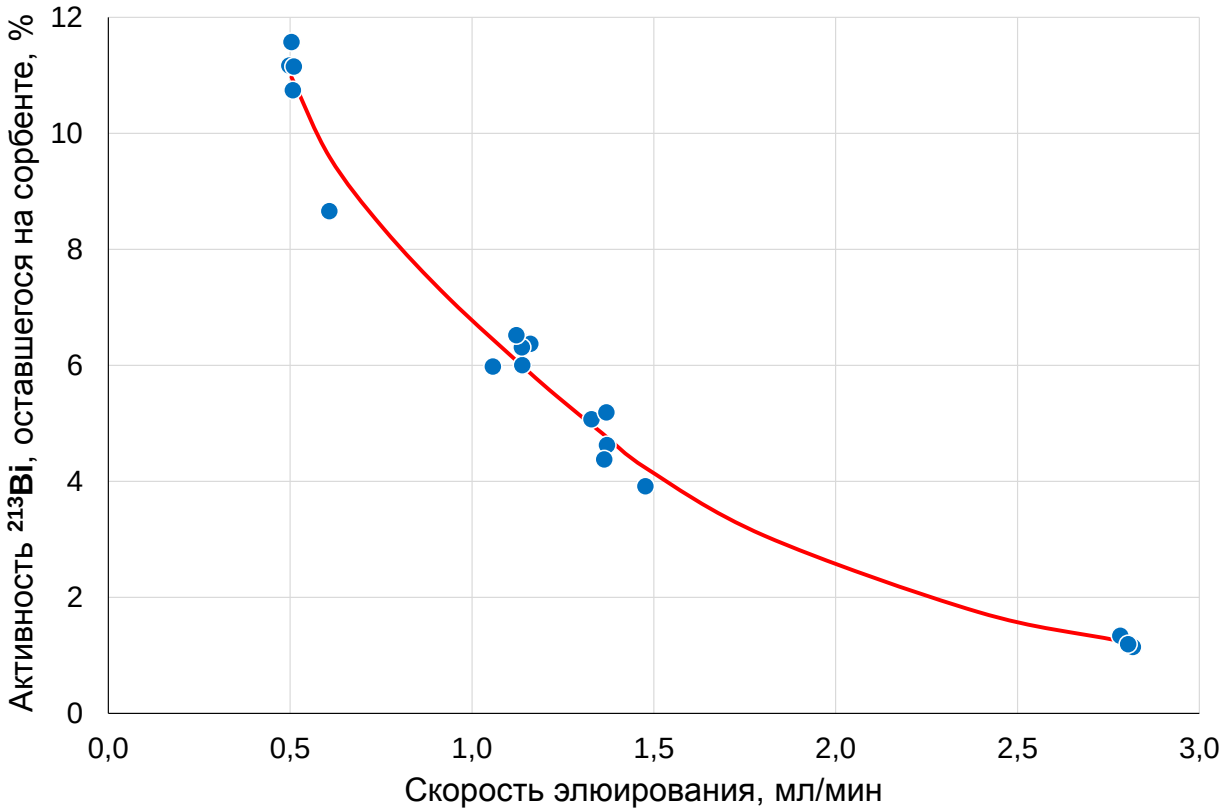


Рисунок 2.23 - Активность ^{213}Bi, оставшегося на сорбенте, в зависимости от скорости элюирования.

Красная линия на рис. 2.23 представляет собой теоретическую кривую, рассчитанную по уравнениям (1, 2), в которых k = 8,92·10^{-4}, а скорость движения ^{221}Fr равна скорости потока элюата. Отношение скоростей k связано с коэффициентом распределения k` соотношением: k`= $\frac{1-k}{k}$. Значение коэффициента распределения для Bi

на смоле Actinide Resin в растворе 0,25 М HNO_3 оказалось равным k`=1120. По литературным данным (E. P. Horwitz, R. Chiarizia, et M. L. Dietz, Reactive and Functional Polym. 33 (1997) 25-36), в растворах 0,2-0,3 М HCl значения k` для Bi находятся в диапазоне 1000-2000, что согласуется с полученным результатом.

2.2.6.2 Поверхностная сорбция и миграция ^{213}Bi

Ранее (Отчет ЛРИК за 2014 г, раздел 3.6.2) был успешно испытан двухколоночный $^{225}Ac \rightarrow {}^{221}Fr \rightarrow {}^{213}Bi$ генератор, в котором ^{221}Fr количественно смывали с первой колонки, содержащей ^{225}Ac на Actinide Resin, раствором 0.25 М HNO_3 и направляли элюат в кварцевую трубку, соединяющую первую колонку со второй, заполненной тем же сорбентом. В трубке рассчитанной длины ^{221}Fr распадался в ^{213}Bi, последний накапливался на второй колонке до достижения равновесия с ^{225}Ac. Было показано, что такой генератор позволяет получить до 90% ^{213}Bi.

В случае использования трубок не из кварца, а из других материалов таких, как политетрафторэтилен (ПТФЭ), полиэтилен (ПЭ) и силикон, наблюдали сорбцию висмута на внутренней поверхности трубок. Для описания поверхностной сорбции и миграции ^{213}Bi были проведены следующие эксперименты. К колонке с материнским ^{225}Ac присоединяли трубки с одинаковым внутренним объемом равным 45 мл. В течение фиксированного (230 мин) и достаточно большого для достижения ^{213}Bi динамического равновесия с ^{225}Ac времени пропускали с разными скоростями один и тот же элюент, затем измеряли активность ^{213}Bi в трубке. Для анализа полученных результатов по предложенной математической модели была рассчитана сетка изолиний, показанная на рис. 24 широкими кривыми.

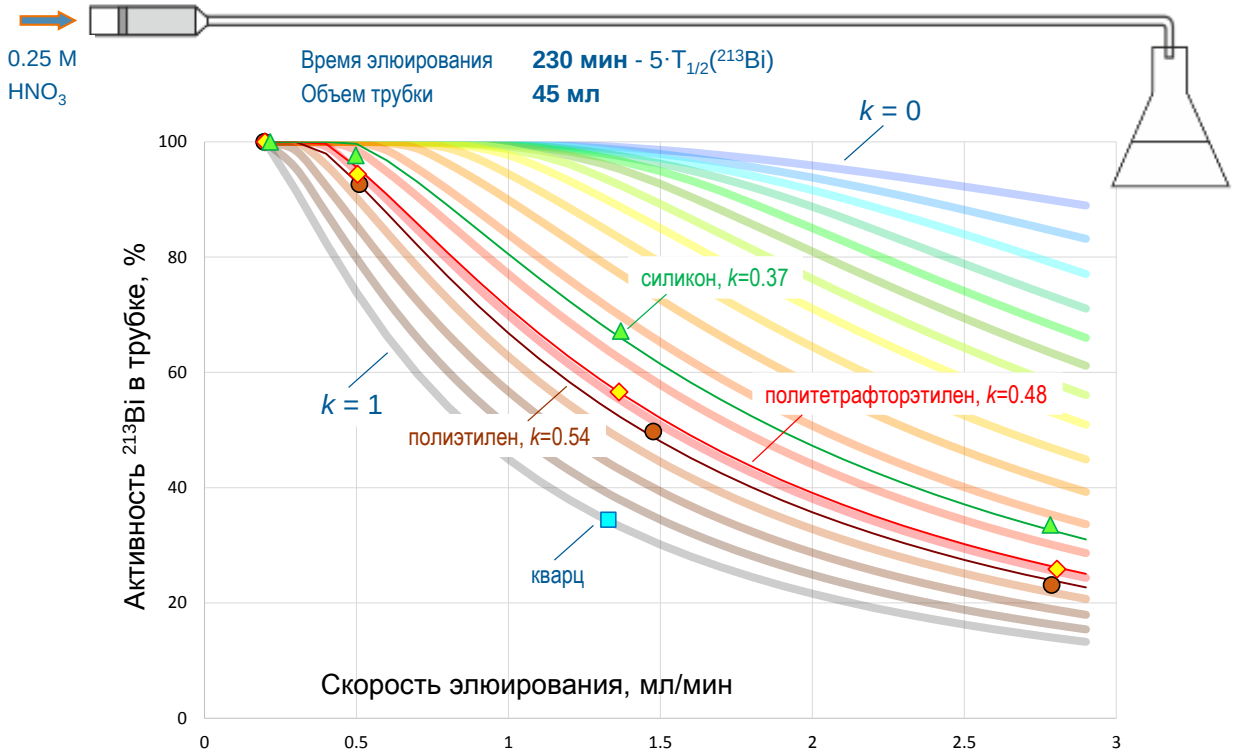


Рисунок 2.24 - Определение отношения скорости движения ^{213}Bi в трубках из различных материалов к скорости потока.

Каждая изолиния соответствует определенному значению k, который в данном случае равен отношению скорости движения висмута к скорости потока (q_2=Q). Например, для скорости потока 2 мл/мин, при полной сорбции висмута в трубке (k = 0) окажется 95% его активности, а при отсутствии сорбции (k = 1) – около 20%. Представленные на рис. 2.24 экспериментальные данные показывают, что сорбция висмута на кварце пренебрежимо мала. Это согласуется с полученными ранее результатами для двухколоночного генератора. Для трубок из других материалов наибольшую сорбцию обнаружили на силиконе (k= 0,37), для ПТФЭ k= 0,48 и для ПЭ k= 0,52.

Тот факт, что висмут движется в трубке медленнее потока элюата, дает возможность реализовать еще один вариант ^{225}Ac → ^{221}Fr → ^{213}Bi генератора, схема и прототип которого представлены на рисунке 2.25.

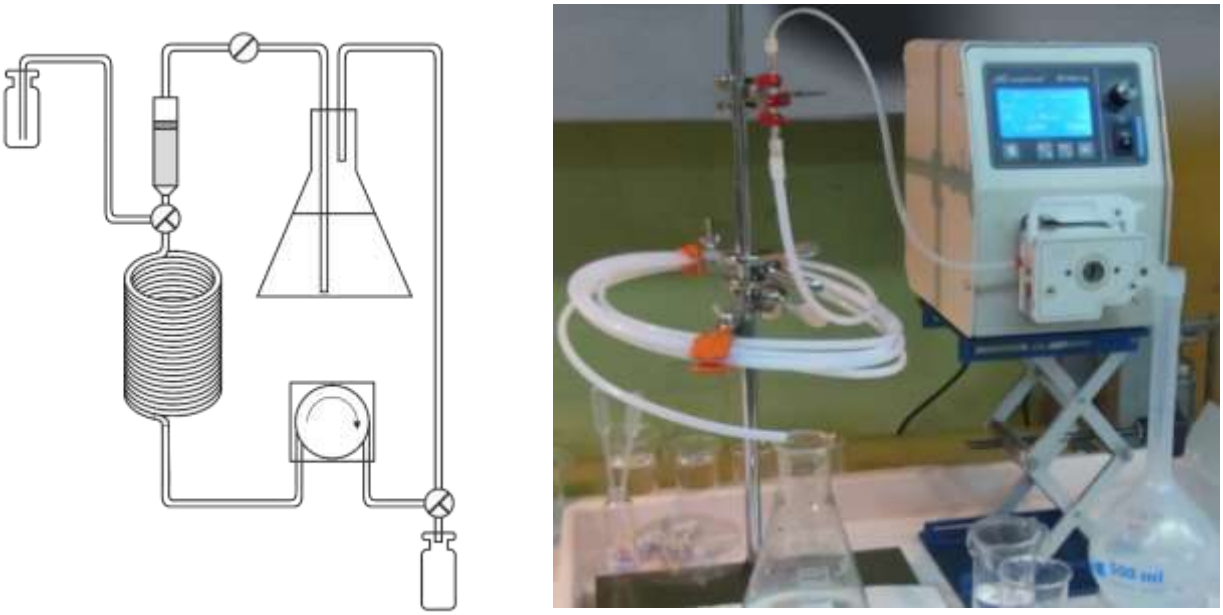


Рисунок 2.25 - Схема и прототип генератора с накоплением ^{213}Bi в трубке. Параметры прототипа: элюент – 0,25 М HNO_3, размеры трубки накопления ^{213}Bi (L × Ø) - 7,5 м × 4,5 мм, материал трубки – ПТФЭ, скорость пропускания элюента 0,5 мл/мин.

Извлечение ^{213}Bi осуществляется в три стадии. На первой стадии раствор из конической колбы проходит через колонку с материнским ^{225}Ac и вымывает ^{221}Fr в трубку, где происходит накопление ^{213}Bi до достижения равновесия с ^{225}Ac. На второй стадии с помощью кранов изолируют колонку с ^{225}Ac и быстро вытесняют раствор из трубки воздухом в коническую колбу, где он готов для повторного использования. Длина трубки накопления, рассчитанная из экспериментально измеренной скорости миграции ^{213}Bi внутри трубки, была достаточной для того, чтобы весь ^{213}Bi остался сорбированным на ее внутренней поверхности. На третьей стадии в верхний флакон добавляют 3-5 мл раствора 0,1-1 М соляной кислоты и смывают им ^{213}Bi со стенок трубки в нижний флакон.

4 Заключение

Проведены следующие исследования и разработки:

- Изучена зависимость выхода стронция-82 от параметров пучка в ходе длительных облучений 8 мишеней током высокой интенсивности на линейном ускорителе ИЯИ РАН. Установлены оптимальный размер, положение и интенсивность пучка.
- В ходе совместных работ с французским центром ARRONAX GIP усовершенствована технология получения стронция-82 на пучке протонов 70 МэВ с химическим выделением методом прямой сорбции из металлического рубидия. Получаемый стронций-82 используется в медицинских целях в России, Франции и США.
- Усовершенствована конструкция и методика изготовления медицинского генератора стронций-82/рубидий-82 для позитронно-эмиссионной томографии для использования в

России и Франции. В результате снижена дозовая нагрузка при проведении ПЭТ и улучшены гидродинамические характеристики генератора, что приведет к большей производительности при медицинской диагностике.

- Отработана методика сборки генераторной колонки и зарядки генератора рубидия-82 в горячей камере ARRONAX (Франция, Нант), что ускорит широкомасштабное внедрение генератора во Франции и России.
- Проведены эксперименты с облученной ториевой мишенью, по получению альфа-излучающих радионуклидов для ядерной медицины;
- Усовершенствована методика выделения ^{223}Ra высокой радионуклидной чистоты, а также общая методика одновременного выделения ^{223}Ra и ^{225}Ac из облученной ториевой мишени;
- Изучены процессы сорбции и выщелачивания^{223}Ra на частицах гидроксиапатита, являющегося перспективным носителем радионуклидов для новых радиофармпрепаратов;
- Разработана методика выделения ^{230}Pa из облученной ториевой мишени, совместимая с общей методикой одновременного выделения ^{223}Ra и ^{225}Ac;
- Изучены режимы извлечения ^{213}Bi из ^{225}Ac → ^{221}Fr → ^{213}Bi генератора;

Результаты работ доложены на конференциях:

1) 9th Symposium on Targeted Alpha Therapy, Warsaw, Poland, May 19 - 21, 2015;

2) VIII Всероссийская конференция по радиохимии "Радиохимия 2015", г. Железногорск Красноярского края, 28 сентября – 2 октября 2015 г.

3) I Международная научно-практическая конференция «Актуальные проблемы разработки, производства и применения радиофармацевтических препаратов» РАДИОФАРМА-2015, г. Москва, 17-19 июня 2015 г.

4 Публикации и доклады

1. В.М. Чудаков, Б.Л. Жуйков, С.В. Ермолаев, В.М. Коханюк, М.И. Мостова, С.В. Шатик, В.В. Зайцев, О.А. Штуковский, Л.А. Тютин, А.М. Гранов. Медицинское изделие генератор рубидия-82. РАДИОФАРМА-2015. I Международная научно-практическая конференция «Актуальные проблемы разработки, производства и применения радиофармацевтических препаратов». Сборник тезисов. Москва, 17-19 июня 2015, ФГБУ «ГНЦ РФ – Федеральный медицинский биофизический центр им. А.И. Бурназяна, с.17.
2. Ю.А.Тихонов, Б.Л.Жуйков. Применение 2015. ядерно-физических методов в медицине. Общее собрание Отделения физических наук РАН, Москва, ФИАН, 7 декабря.
3. V. Ostapenko, A. Vasiliev, E. Lapshina, S. Ermolaev, R. Aliev, Yu. Totskiy, B. Zhuikov, S. Kalmykov. Extraction chromatographic behavior of actinium and REE on DGA, Ln and TRU resins in nitric acid solutions. J Radioanal Nucl Chem, 2015, v. 306, issue 3, p. 707-711.

4. E.V. Lapshina, S.V. Ermolaev, B.L. Zhuikov, A.N. Vasiliev, V.S. Ostapenko, R.A. Aliev, S.N. Kalmykov. α – Emitting radionuclides from natural thorium irradiated with protons. 9th Symposium on Targeted Alpha Therapy, Warsaw, Poland, May 19 - 21, 2015.

5. V.S. Ostapenko, A.N. Vasiliev, E.V. Lapshina, S.V. Ermolaev, B.L. Zhuikov, R.A. Aliev, S.N. Kalmykov. Extraction chromatographic behavior of actinium and REE. 9th Symposium on Targeted Alpha Therapy, Warsaw, Poland, May 19 - 21, 2015.

6. A.N. Vasiliev, V.S. Ostapenko, E.V. Lapshina, S.V. Ermolaev, B.L. Zhuikov, R.A. Aliev, S.N. Kalmykov. Evaluation of hydroxyapatite particles as carriers for ^{223}Ra recovered from proton-irradiated thorium. 9th Symposium on Targeted Alpha Therapy, Warsaw, Poland, May 19 - 21, 2015.

7. С.В. Ермолаев, А.К. Скасырская. Хроматографическое разделение ^{225}Ac, ^{221}Fr и ^{213}Bi в динамических условиях. VIII Всероссийская конференция по радиохимии "Радиохимия 2015", г. Железногорск Красноярского края, 28 сентября – 2 октября 2015 г.

8. В.С. Остапенко, А.Н. Васильев, С.В. Ермолаев, Е.В. Лапшина, И.Л. Синенко, Т.Ю. Екатова, Б.Л. Жуйков, С.Н. Калмыков. Выделение ^{230}Pa из облученной ториевой мишени. VIII Всероссийская конференция по радиохимии "Радиохимия 2015", г. Железногорск Красноярского края, 28 сентября – 2 октября 2015 г.

9. А.Н. Васильев, В.С. Остапенко, Е.В. Лапшина, С.В. Ермолаев, Б.Л. Жуйков, С.С. Данилов, С.Н. Калмыков. Выделение ^{223}Ra из природного тория, облученного протонами. VIII Всероссийская конференция по радиохимии "Радиохимия 2015", г. Железногорск Красноярского края, 28 сентября – 2 октября 2015 г.

10. А.В. Северин, А.Н. Васильев, В.С. Остапенко, Е.В. Лапшина, Е.В. Черных, С.Н. Калмыков. Особенности сорбционного взаимодействия ^{223}Ra с различными текстурными формами гидроксиапатита – перспективного носителя терапевтических альфа-эмиттеров. VIII Всероссийская конференция по радиохимии "Радиохимия 2015", г. Железногорск Красноярского края, 28 сентября – 2 октября 2015 г.

11. И.Л. Синенко, В.С. Остапенко, Т.Ю. Екатова, А.Н. Васильев, Е.В. Лапшина, С.Н. Калмыков. Определение коэффициентов распределения Ac, La, Ce и Pa на сорбентах TRU, LN и DGA Resin. VIII Всероссийская конференция по радиохимии «Радиохимия-2015», г. Железногорск Красноярского края, 28 сентября- 2октября 2015г.

4 Патенты

1. B.L. Zhuikov, S. V. Ermolaev, V. M. Kokhanyuk. Method for producing radiostrontium. Патент США 8929505 B2. Дата публикации 6 января 2015.
2. B.L. Zhuikov, S. N. Kalmykov, R.A. Aliev, S.V. Ermolaev, V.M. Kokhanyuk, N. A. Koniakhin, I.G. Tananaev, B.F. Myasoedov. Method for producing actinium-225 and isotopes of radium and target for implementing same. US Patent US9058908 B2. Дата публикации 16 июня 2015.
3. В.М. Чудаков, Б.Л.Жуйков, В.М. Коханюк. Генератор рубидия-82 и способ его приготовления. Патент РФ №2546731, зарегистрирован 4 марта 2015.

3 Разработка элементов ускорителей для Российских и зарубежных научных центров.

Список исполнителей:

1.	Белов Александр Степанович	зав.лабораторией, к/н
2.	Брусова Наталья Ивановна	вед.инженер-констр.
3.	Васильев Иван Андреевич	научный сотрудник
4.	Венгер Ирина Романовна	Ст. инженер
5.	Володкевич Ольга Михайловна	научный сотрудник
6.	Гаврилов Сергей Александрович	научный сотрудник
7.	Гаврилюк Юрий Яковлевич	старший инженер
8.	Гайдаш Виктор Александрович	вед.инженер-электроник
9.	Готовцев Юрий Николаевич	ведущий инженер по ЭУ
10.	Железов Игорь Николаевич	вед.инженер-констр.
11.	Зиновьев Геннадий Павлович	зам.зав.отделом
12.	Зубец Валерий Николаевич	научный сотрудник
13.	Калинин Юрий Жоржевич	зав.лабораторией, к/н
14.	Киселев Юрий Васильевич	зав.лабораторией, к/н
15.	Кленов Виктор Сергеевич	научный сотрудник
16.	Михайлов Владимир Никитович	вед.инженер по ЭУ
17.	Набока Александр Николаевич	нач-к установок
18.	Парамонов Валентин Витальевич	вед.н.с.,д/н
19.	Рейнгардт-Никулин Петр Игоревич	научный сотрудник
20.	Тараничева Наталья Михайловна	старший лаборант
21.	Турбабин Александр Васильевич	вед.инженер по ЭУ
22.	Фещенко Александр Владимирович	Зам. директора

3 Содержание работ

В 2015 году проводились исследования на стенде источника поляризованных ионов водорода и дейтерия ИЯИ РАН и участие в создании источника поляризованных ионов для проекта НИКА (ОИЯИ). Для источника поляризованных ионов ОИЯИ в соответствии с договором между ИЯИ РАН и ОИЯИ было разработано и изготовлено следующее оборудование: времяпролетный масс-спектрометр атомарного водородного пучка и блоки питания импульсного генератора плазмы, включая блок управления с оптоволоконной связью и блок импульсного вытягивающего напряжения с регулируемой амплитудой импульсов до 25 кВ, длительностью импульса до 400 мкс, частотой повторения до 1 Гц и стабильностью напряжения $\pm 3\ 10^{-3}$. Были выполнены испытания аппаратуры на стенде источника поляризованных ионов водорода и дейтерия ИЯИ РАН, а затем на стенде в ОИЯИ.

По договору с ОИЯИ по теме «Создание опытных образцов оборудования диагностики пучка для LEBT ЛУ-20 и HILAC комплекса NICA ОИЯИ» изготовлено два

диагностических узла для ускорителей ЛУ-20 и HILAC, разработанные ранее, и включающие многопроволочные датчики профиля, индукционные датчики тока и цилиндры Фарадея, а также соответствующее электронной оборудование. Произведены сборка, юстировка, вакуумные и электрические испытания и поставка диагностических узлов заказчику.

Завершено выполнение НИР по договору с ИФВЭ по теме «Разработка технического проекта модернизации источника ионов водорода в каскаде ускорителей ЛУ-30 и У-1.5». При выполнении НИР разработана структурная схема источника, функциональные схемы систем питания и управления, принципиальные схемы генератора тока разряда, блока питания газового клапана, блока контроля подачи цезия, блока контроля температуры корпуса, генераторов вытягивающего напряжения 25 кВ и ускоряющего напряжения 100 кВ. Проведены расчеты ионно-оптической системы вытягивания и ускорения до 100 кэВ и ионно-оптической системы согласования пучка с входом начальной части ускорителя, разработаны и изготовлены макеты генератора тока разряда и блока питания газового клапана, определены технические требования к характеристикам и параметрам системы диагностики пучка ионов в канале согласования пучка, разработан чертеж общего вида источника.

Также по договору с ИФВЭ начата работа по теме «Разработка узлов источника ионов водорода Н-минус для каскада ускорителей ЛУ-30 и У-1.5». Завершены разработка, изготовление, наладка и испытания на эквиваленте нагрузки макета блока контроля подачи цезия и макета блока контроля температуры корпуса. Ведется разработка рабочих чертежей газоразрядной камеры и магнитной системы источника ионов, а также газового клапана.

В 2015 году продолжалось участие в эксперименте AEGIS (Antimatter Experiment, Gravity, Interferometry, Spectroscopy), выполняемого в ЦЕРНе на пучке антипротонов из антипротонного кольца AD. Целью эксперимента является получение холодных атомов антиводорода и измерение их свойств, включая измерение ускорения атомов антиводорода в гравитационном поле Земли. Для синтеза атомов антиводорода в ловушках заряженных частиц в сильном магнитном поле, создаваемым сверхпроводящим соленоидом, осуществляется смешивание позитронов и медленных антипротонов. Для позитронной аппаратуры из ИЯИ РАН в ЦЕРН ранее был поставлен прецизионный магнит, который был использован в аккумуляторе позитронов. В сеансе с антипротонным пучком в октябре – декабре 2015 года использовалась и позитронная аппаратура, из которой был получен пучок позитронов с параметрами, близкими к проектным значениям. Сотрудники ИЯИ РАН принимали участие в проведении сеанса, в том числе в настройке

позитронной аппаратуры, настройке канала транспортировки позитронов в ловушку в сильном магнитном поле и настройке процесса образования атомов антиводорода методом смешивания захваченных в ловушки и охлажденных антипротонов и позитронов.

Продолжено выполнение НИР по договору с ЦЕРН, Швейцария по теме «Разработка, изготовление, лабораторные испытания, поставка и наладка измерителя продольного распределения заряда в сгустках для канала транспортировки из ускорителя Linac-4 в бустер». Закончено изготовление и выполнены сборка, наладка и лабораторные испытания как в ИЯИ РАН, так и в ЦЕРН. Измеритель подготовлен для установки на выходе ускорителя Linac-4.

Начато выполнение НИР по контракту с комплексом FRIB Мичиганского университета, США по теме «Разработка, изготовление, поставка и наладка Измерителя Формы Сгустков для Комплекса пучков редких изотопов (FRIB) MSU». Завершена разработка эскизного проекта и начато рабочее проектирование.

Продолжено выполнение НИР по контракту с лабораторией GSI, Германия по теме «Разработка, изготовление, испытания, поставка и наладка Измерителя формы сгустков (BSM) с тремя сменяемыми ВЧ дефлекторами и тремя сменяемыми электронными ВЧ трактами для линейных ускорителей GSI и проекта FAIR (линейный ускоритель протонов, ускоритель UNILAC и линейный ускоритель непрерывного действия)». Завершено изготовление оборудования, сборка, наладка и лабораторные испытания. Изготовленное оборудование подготовлено к отправке в GSI.

В рамках участия в проекте PITZ, ДЕЗИ, Цойтен выполнена работа по теме «Исследование, разработка и запуск электродинамических систем стенда фотоинжектора для исследование формирования сгустков электронов сверхвысокой яркости». С участием ИЯИ РАН на установке PITZ произведен физический пуск системы поперечного отклонения сгустков электронов, что позволило начать исследования продольного распределения частиц в сгустке. Достигнут уровень отклоняющего напряжения 50% от проектного, ограниченный в настоящее время уровнем отраженной мощности в ВЧ тракте. Выполнены измерения параметров тракта, позволившие разработать элемент ВЧ согласования. Завершена полная оптимизация конструкции и разработка физического проекта усовершенствованного резонатора фотоинжектора для международного проекта European XFEL. В сочетании предложенных и исследованных физических и конструкционных решений предложение превосходит по всем параметрам существующие аналоги.

В рамках участия в разработке и изготовлении систем диагностики пучка для Европейского лазера на свободных электронах XFEL, ДЕЗИ, Гамбург полностью завершено изготовление оборудования и монтаж в тоннеле ускорителя на участке энергии пучка 120 MeV всех элементов системы TDS Injector. Проведен полный цикл как автономных, так и комплексных испытаний элементов и система полностью подготовлена к запуску с пучком на высоком уровне ВЧ мощности. Продолжено изготовление и монтаж в тоннеле ускорителя оборудования систем TDS BC1 и TDS BC2.

В рамках сотрудничества с FTSC (Англия) по разработке элементов линейного ускорителя для проекта CLARA проводилось авторское сопровождение (совместно с FTSC) изготовления и настройки разработанного в 2014 г. резонатора фотоинжектора. Проводятся исследования факторов, определяющих стабильность распределения поля в резонаторе с целью обеспечения уникально малого отклонения фазы поля, не более 0.01 градуса, в многосгустковом режиме работы резонатора.

3 Публикации, индексируемые в WoS

1. V. Anastassopoulos, et. al., (CAST collaboration, A. Belov from INR RAS) “Search for chameleons with CAST”, Physics Letters B, Volume 749.

2. G. Consolati, et. al., (AEGIS collaboration, A. Belov from INR RAS). “Experiments with low-energy antimatter”, EPJ Web of Conferences, 96, 01007 (2015).

3. Arik, S. Aune, K. Barth, A. Belov, S. Borghi, et. al., (CAST Collaboration), New solar axion search using the CERN Axion Solar Telescope with He-4 filling. Physical Review D, 92 (2) (2015), 6p. DOI: http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevD.92.021101.

4. S. Aghion, C. Amsler, A. Ariga, T. Ariga, A.S. Belov, G. Bonomi et al., (AEGIS collaboration), Positron bunching and electrostatic transport system for the production and emission of dense positronium clouds into vacuum, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B Beam Interactions with Materials and Atoms, 362(2015)86-92. DOI: 10.1016/j.nimb.2015.08.097.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В отчёте представлены результаты фундаментальных и прикладных работ, проведённых по государственному заданию в соответствии с планом научных исследований ИЯИ РАН на 2015 год. Из полученных результатов можно выделить следующие важнейшие результаты работ:

Разработка технологии протонной терапии. Предложен новый метод конформного формирования дозового поля протонной терапии, который позволяет уменьшить лучевые повреждения здоровых тканей при проведении протонной терапии опухолей. Данная технология применима для т.н. пассивного рассеяния при формировании дозового распределения для протонов и ионов. Для разработки и проверки данного метода была использована авторская программа Монте–Карло SRNA. ИЯИ РАН.

Разработка технологии производства нового источника для брахитерапии на основе иттербия. Получены активированные образцы новых иттербиевых источников для брахитерапии и совместно с ПИЯФ КИ проведены доклинические испытания источников с использованием культур раковых клеток. Исследования показали высокую радиобиологическую эффективность иттербиевых источников: наблюдалось отложенное по времени разрушение раковых клеток даже для сверхмалых доз от иттербиевых источников. ИЯИ РАН.

Осуществлялась разработка и внедрение новой технологии получения стронция-82 и целого ряда других радиоизотопов.

В 2015 году проводились исследования на стенде источника поляризованных ионов водорода и дейтерия ИЯИ РАН и участие в создании источника поляризованных ионов для проекта НИКА (ОИЯИ), создавались приборы для целого ряда зарубежных научных центров.

Полученные результаты находятся на уровне лучших мировых или превышают их.