

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

член-корр. РАН д.т.н.

Л.В.Кравчук

24 января 2017 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 2016 год)
0031-2014-0070

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

А.В.Фещенко
19 января 2017 года

Москва 2017

СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ

Руководитель темы д.ф.-м.н.



А.В.Фещенко (реферат, введение,
заключение)

19.01.2017

Исполнители темы:



д.ф.-м.н. Акулиничев С.В. (раздел 1)
19.01.2017



д.х.н. Жуйков Б.Л. (раздел 2)
19.01.2017

РЕФЕРАТ

Отчёт содержит: 83 с., 48 рис., 9 табл.

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

В отчёте представлены результаты фундаментальных и прикладных работ, проведённых по государственному заданию в соответствии с планом научных исследований ИЯИ РАН на 2016 год. Из полученных результатов можно выделить следующие важнейшие результаты работ.

В области разработки новых методов дистанционной лучевой терапии исследованы характеристики медицинских пучков протонов, сформированных гребенчатыми фильтрами. Показано, что реальное глубинное дозовое распределение может отличаться от расчётного в виде спада дозы в области дистального края модифицированного пика Брэгга. Решением данной проблемы может стать усложнение расчётной геометрии, включающее в себя введение в систему остальных формирующих устройств, таких как первичный и вторичный рассеиватели.

Запущен в работу анализатор «РТWT41029, который показал высокую эффективность набора дозовых распределений и надёжность работы.

Удовлетворительный по качеству пучок с энергией 209 МэВ исследовался визуально по люминофору в процедурной КПП. Разработаны предложения по улучшению контроля качества терапевтического пучка.

Проведены исследования физико-дозиметрических характеристик микроисточников на основе иттербия-169 (с удельной активностью 185 ГБк) в воздухе и в водном фантоме. Показано, что мощность экспозиционной дозы в воздухе на расстоянии 1 м от источника составляет 64,1 нА/кг, слой половинного ослабления поглощённой дозы в водяном фантоме – 0,9 см. Измеренные дозиметрические данные аппроксимируются степенными функциями, хорошо совпадающими с расчётными, полученными на основе спектральных характеристик Yb-169.

Разработанные иттербиевые источники обладают всеми основными требованиями, предъявляемыми к медицинским источникам для контактной лучевой терапии. После проведения клинических испытаний, эти источники можно будет рекомендовать для применения в медицине.

В радиоизотопных исследованиях совместно с Лос-Аламосской национальной лабораторией (США) продолжено изучение зависимости выходов медицинского изотопа стронция-82 от режима облучения рубидиевых мишеней при высоких токах протонного

пучка и при различной форме и смещении пучка. Внедрены элементы российской технологии получения стронция-82 в фирме ZEVACOR (США), где начинается регулярное производство продукции, которая будет поставляться в фармацевтические и медицинские учреждения США и России.

Исследованы характеристики генератора стронций-82/рубидий-82, изготавливаемого по технологии ИЯИ РАН в России – РНЦРХТ (С-Петербург) и во Франции - ARRONAX GIP/NAOGEN PHARMA (г. Нант), и используемого при диагностике кардиологических и онкологических заболеваний методом позитронной эмиссионной томографии (ПЭТ). Изучены особенности взаимодействия сорбента гидратированного диоксида олова в генераторе рубидия-82. На основе этого продемонстрирована возможность изготовления генераторов рубидия-82 с увеличенной общей рабочей ёмкостью за счёт изменения конструкции генераторной колонки, что позволит увеличить производительность генератора рубидия-82 без изменения внешней конструкции, повысит его надёжность в ПЭТ-диагностике.

Совместно с МГУ им. М.В. Ломоносова усовершенствована методики получения медицинских радионуклидов актиния-225, радия-223, а также протактиния-230, из металлического тория, облученного протонами средних энергий. Изучена радиационная стойкость экстракционно-хроматографических сорбентов используемых в методике выделения. Изучено влияние pH раствора на эффективность мечения частиц гидроксиапатита, являющегося перспективным носителем для новых радиофармпрепаратов, радионуклидом ^{223}Ra . Изучено экстракционно-хроматографическое поведение ^{230}Ra на некоторых экстракционно-хроматографических сорбентах.

Получены экспериментальные значения сечений продуктов деления тория при облучении протонами с энергиями 141-21 МэВ, и изучена конкуренция каналов симметричного и асимметричного деления тория.

Получены экспериментальные сечения радиоизотопов теллура, образующихся в основном и метастабильном состоянии (^{119g}Te , ^{119m}Te , ^{121g}Te , ^{121m}Te) при облучении сурьмы (натуральной и обогащенной - ^{123}Sb и ^{121}Sb) протонами средних энергий и произведено сравнение с теоретическими значениями, рассчитанными с использованием новой систематики для изомерных соотношений.

В области совершенствования средств и методов аварийной радиационной защиты для обеспечения пожарной безопасности радиационно-опасных объектов и экологической чистоты ядерной энергетики создана установка для исследования радиационно-защитных свойств материалов и проведены экспериментальные исследования содержания тяжёлых

металлов в образцах материалов; разработаны способы оценки тяжести аварийных сочетанных радиационных поражений при многофакторном облучении и прогнозирования распределения доз индивидуальных поражений при ядерных и радиационных авариях.

Полученные результаты находятся на уровне лучших мировых или превышают их.

СОДЕРЖАНИЕ

Реферат	3
Введение	7
Основные результаты	8
1 Лаборатория медицинской физики	8
2 Радиоизотопные исследования	36
3 Лаборатория атомного ядра	76
Заключение	82

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, эмиттанс). 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 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 $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$, $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ и $^{223}\text{Ra}/^{211}\text{Pb}$, при эксплуатации которых получают короткоживущие медицинские радионуклиды, являющиеся продуктом радиоактивного распада долгоживущих.

ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

1 Лаборатория медицинской физики.

1.1 Разработка новых методов дистанционной лучевой терапии

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

Ответственные исполнители:

Ю.К.Гаврилов

Д.А.Коконцев

Д.Б.Лазебник

Т.С.Михайлова

И.А.Яковлев

1.1 РЕФЕРАТ

ПРОТОННАЯ ТЕРАПИЯ, МОДУЛЯЦИЯ ЭНЕРГИИ ПУЧКА ПРОТОНОВ, СИМУЛЯЦИЯ ПРОБЕГОВ ПРОТОНОВ, ВОДНЫЙ ФАНТОМ «PTWT41029», ГРЕБЕНЧАТЫЕ ФИЛЬТРЫ, МЕТОД МОНТЕ-КАРЛО

Целью исследований, проведённых в Лаборатории медицинской физики в 2016 году, было:

Расчет формирующих устройств (гребенчатых фильтров) новой конструкции, позволяющих повысить конформность протонной лучевой терапии.

Оценка качества формирования пучка с помощью системы двойного рассеяния для протонов с энергией 130-209 МэВ в новых условиях управления медицинским каналом. Оценка радиационных фонов в помещениях КПП.

Запуск в работу нового автоматизированного водного фантома «PTWT41029» с программным обеспечением «Mephystomc» Проведение на нем исследований при формировании медицинского пучка. Измерение поперечных и глубинных распределений дозы.

Оценка работы гребенчатых фильтров для модуляции энергии пучка 25мм и 50мм рассчитанных по разработанной программе FilterCalc с симуляцией пробега протонов в веществе по программе SRNA, использующей алгоритмы метода Монте-Карло.

Объектами исследования были: формируемый пучок с помощью системы двойного рассеяния для протонов с энергией 130-209 МэВ в новых условиях управления медицинским каналом; работа нового автоматизированного водного фантома «PTWT41029» с программным обеспечением «Mephystomc»; гребенчатые фильтры для модуляции энергии пучка 25- 50мм, рассчитанные по разработанной программе FilterCalc с симуляцией пробега протонов в веществе по программе SRNA, использующей методы Монте-Карло.

В процессе работы проводилось формирование протонного медицинского пучка с начальной энергией протонов 130- 209Мэв, установка и регулировка первичного и вторичного рассеивателей, измерение распределений поглощенной дозы в воде с помощью анализатора дозы МРЗ-Р Т41029. Измерялись интенсивности сформированного пучка и отсчет мониторных единиц.

В процессе исследования впервые были разработаны два гребенчатых фильтра для модуляции энергии пучка 25мм и 50мм рассчитанных по разработанной программе FilterCalc с симуляцией пробегов протонов в веществе по программе SRNA, использующей алгоритмы метода Монте-Карло.

Степень внедрения разработок- проводятся работы по исследованию работы гребенчатых фильтров на базе расчетных данных, запущен в работу новый автоматизированный водный фантом «PTWT41029» с программным обеспечением «Mephystomc». Эффективность гребенчатых фильтров определяется однородностью распределения дозы в области интереса (на плато пика Брэгга).

1.1 ОПРЕДЕЛЕНИЯ

Критические органы -это органы и ткани, повреждение которых при облучении организма вызывает существенное нарушение его жизнедеятельности.

1.1 ОБОЗНАЧЕНИЯ И СОКРАЩЕНИЯ

КПТ - Комплекс протонной терапии

ОУК - Отдел ускорительного комплекса

1.1 ВВЕДЕНИЕ

Более половины онкологических больных сейчас излечиваются с использованием дистанционной или контактной радиотерапии (в виде самостоятельного или сочетанного лечения) при этом 10-15 % онкологических больных нуждаются в протонной терапии. К их числу относятся пациенты, у которых опухоли расположены вблизи критических органов, и обычная лучевая терапия или хирургия не показаны ввиду опасности повреждения критических органов.

Как известно, ускоренные протоны обладают специфическим поведением при прохождении любой среды – выделяемая ими ионизирующая энергия не убывает по мере замедления в среде, как у электронов или фотонов, а наоборот достигает максимума в момент остановки. Выделение ионизирующей энергии в тканях организма приводит к локальному разрушению клеток в заданном месте. Индивидуально подбирая энергию протонов, можно локально разрушить опухоль, расположенную на любой глубине. Практическая реализация протонной терапии до сих пор является весьма сложной научной и технической проблемой.

За последние 40 лет в России не было введено в строй ни одного нового центра протонной терапии (только в 2016 начались работы по вводу в эксплуатацию протонного центра в Протвино), тогда как в мире ежегодно вводится в строй несколько таких центров и их общее количество превысило 60. В результате, протонная терапия в России доступна лишь около 1% больных из числа тех, кому она показана. Нуждается в России в протонной терапии по разным оценкам около 50 тысяч больных ежегодно.

1.1.1 ПРОТОННАЯ ТЕРАПИЯ В ИЯИ РАН

В настоящее время проходят испытания первой терапевтической протонной лучевой установки ИЯИ РАН в Троицке с фиксированным горизонтальным пучком протонов. Больница РАН (г.Троицк) является основным медицинским соисполнителем проекта создания Комплекса протонной терапии (КПТ) в Троицке. Результаты испытаний установки показали, что полученный пучок протонов удовлетворяет основным терапевтическим требованиям и позволяет облучать опухоли любой локализации с размерами до 9 см с наилучшим для России качеством радиотерапии. При создании КПТ учеными ИЯИ РАН и Больницы РАН(г.Троицк) было сделано несколько десятков уникальных разработок, например, автоматизированный высокоточный позиционер пациента, позволяющий облучать пациента как в сидячем, так и в лежачем положении, оригинальная система формирования пучков и др. Кроме того, КПТ в г. Троицк является единственным в России центром, в котором можно проводить сочетанную радиотерапию на пучках протонов и фотонов, полученных на ускорителе электронов. Такая сочетанная лучевая терапия позволяет наиболее эффективно использовать дорогостоящие ускорители протонов и сделать протонную терапию более доступной без ухудшения качества протонной терапии.

1.1.2 РАБОТЫ ПО ПРОТОННОЙ ТЕРАПИИ В 2016 ГОДУ

Целью исследований, проведенных на протонном пучке ИЯИ РАН в Лаборатории медицинской физики во время сеансов 2016 года было:

- Оценка качества формирования пучка с помощью системы двойного рассеяния для протонов с энергией 130-209 МэВ в новых условиях управления медицинским каналом. Оценка радиационных фонов в помещениях КПТ.
- Запуск в работу нового автоматизированного водного фантома «PTWT41029» с программным обеспечением «Mephystomc» Проведение на нем исследований при формировании медицинского пучка. Измерение поперечных и глубинных распределений дозы.
- Оценка работы гребенчатых фильтров для модуляции энергии пучка 25-50мм, рассчитанных по разработанной программе FilterCalc с симуляцией пробега

протонов в веществе по программе SRNA, использующей алгоритмы метода Монте-Карло.

1.1.2.1 ИСПОЛЬЗОВАННОЕ ОБОРУДОВАНИЕ И МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Схема формирования протонного медицинского пучка с начальной энергией протонов 130-209 МэВ представлена на рис. 1.1.1. Пучок протонов выходит из ионопровода через мембрану толщиной 1,045 мм Al и проходит через отверстие в графитовом коллиматоре диаметром 10 мм и длиной 280 мм. Отверстие сделано в графитовом кубе, установленном вблизи выходного окна ионопровода. На выходе из коллиматора устанавливается первичный рассеиватель из медной фольги, его толщина равна 400 мкм. Далее пучок проходит через отверстие в биологической защите диаметром 10 см и длиной 120 см, на выходе из которого установлен вторичный профилированный рассеиватель из меди с профилированным замедлителем из плексигласа, позволяющим добиться одинаковых потерь энергии протонов во всем сечении пучка. Системы двойного рассеяния были спроектированы с помощью программы NEU [1] и подробно описаны в отчете сеанса 30.11.10 [2].

После взаимодействия с вторичным рассеивателем пучок протонов проходит через плоскопараллельную ионизационную камеру-монитор модели 786 (PTW Freiburg), установленную на оптической скамье, гребенчатый фильтр, индивидуальный коллиматор и индивидуальный болюс, предназначенные для окончательного формирования пучка перед его подачей на фантом (тело пациента).

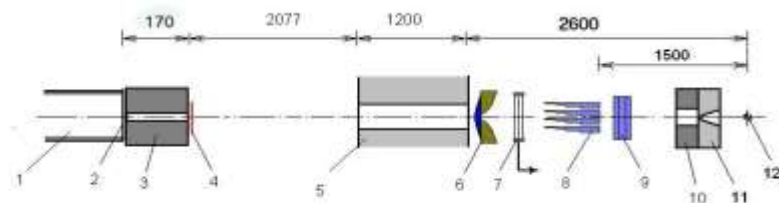


Рисунок 1.1.1 - Система формирования медицинского протонного пучка в ЛМФ ИЯИ РАН.

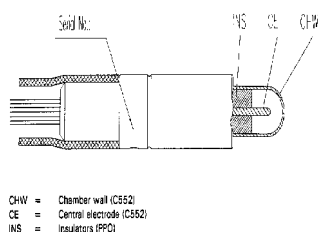
Измерения распределений поглощенной дозы в воде были выполнены с помощью анализатора дозы MP3-P T41029 в соответствии с рисунком 1.1.2, включающего водный фантом из акрила с внутренним размером 448x480x350 мм³, механизм перемещения детектора в фантоме с точностью 0,1 мм, две ионизационные камеры (полевая и референсная), двухканальный электрометр для измерения ионизационного тока камер, блок управления перемещением детектора и управляющий компьютер. Полевая камера по заданной программе перемещалась внутри фантома для измерения поглощенной дозы в различных его точках, референсная камера была закреплена снаружи фантома в пределах пучка протонов. Регистировалось отношение полевой и референсной камер (цифровое

деление сигналов), что позволяло минимизировать влияние временной нестабильности пучка на результаты измерений.



Рисунок 1.1.2 Анализатор MR3-PT41029. На фото видно расположение референсной ионизационной камеры на штанге с держателем, водный фантом и полевую ионизационную камеру в креплении позиционера водного фантома.

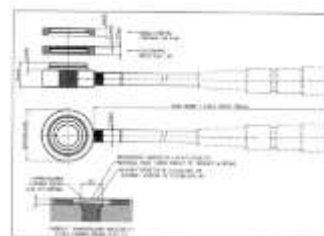
В качестве референсной использовалась ионизационная камера IC-10 объемом 0,14 см³ наперсткового типа в соответствии с рисунком 3. В качестве полевой при измерении профилей и глубинных доз использовалась плоскопараллельная камера Advanced Markus



CHW = Chamber wall (C552)
CE = Central electrode (C552)
INS = Insulators (PPC)

Chamber Type 34045 объемом 0.02 см³.

(a)



(б)

Рисунок 1.1.3 - Конструкция камер IC-10 (a) и AdvancedMarkus 34045(б)

Горизонтальный пучок протонов попадал в водный фантом через боковую стенку толщиной 5мм (материал PMMA); оси и нулевое положение детектора в фантоме совмещалось с геометрической осью пучка с помощью лазерного нивелира по геодезическим меткам. Расстояние между плоскостью входного окна полевой камеры и внутренней стенкой фантома составляло 20мм. Плотность входного окна камеры вместе с защитным водонепроницаемым кожухом составляла 106мг/см².

Для измерений интенсивности сформированного пучка и отсчета мониторинговых единиц была использована проходная плоскопараллельная камера модели 786 (PTW Freiburg), используемая совместно с клиническим дозиметром Multidos. Камера

устанавливалась на оптической скамье на расстоянии 10 см от вторичного рассеивателя в соответствии с рисунком 1.1.4.



Рисунок 1.1.4 Проходная плоскопараллельная камера модели 786 PTW Freiburg

1.1.2.1.1 ПРЕДВАРИТЕЛЬНАЯ НАСТРОЙКА ПУЧКА

Предварительная настройка пучка проводилась без рассеивателей S_1 и S_2 . При этом оба затвора Z_1 и Z_2 перекрывали попадание пучка в процедурную КПТ. На затворе Z_1 был расположен люминофор, ТВ изображение которого передавалось на экран в пультовую КПТ. Затем был введен коллиматор в начальной части ускорителя для снижения тока пучка до рабочих значений КПТ. Были подняты оба затвора Z_1 и Z_2 , проходная камера в процедурной показывала 12Гр/мин. Началась настройка пучка на изоцентр фантома.

Характерные профили при настройке пучка соответствуют рисунку 1.1.5.

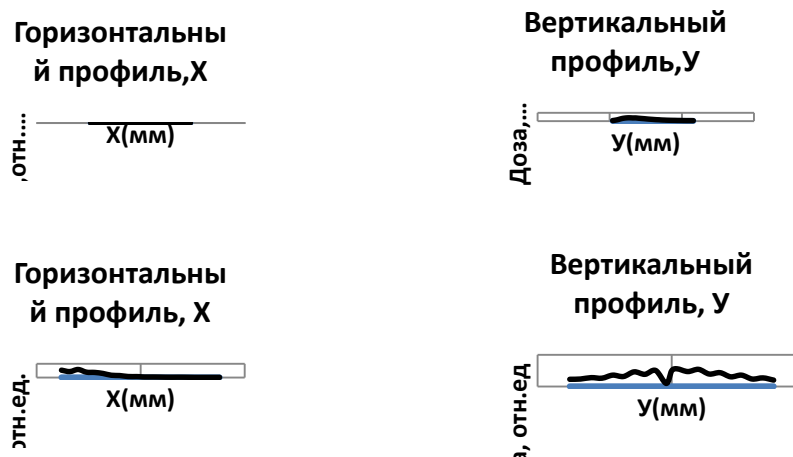


Рисунок 1.1.5- Характерные профили при настройке пучка

На выходное окно коллиматора в защите процедурной (№ 1, 2) и на центр входного окна водного фантома(3) были установлены пленки GafchromicMD-V2-55 в соответствии с рисунком 1.1.6.



Рисунок 1.1.6 - Проходящий пучок на пленках GafchromicMD-V2-55

Из рисунков 1.1.5-6 видна характеристики нестабильности положения пучка с преобладанием смещения его центра вверх и влево. В 17:40 пленки были показаны сотрудникам ОУК, которые приняли решение поднять интенсивность пучка и продолжать настройку по своим профилометрам. Значение токов на магнитах: 2М4=228А, 3М6=490А, MBV9=346.5, MBV12=354.3А. После подстройки сняты профили пучка и глубинное дозное распределение соответствует рисунку 1.1.7. Видно, что смещение центра пучка составляет около 10мм по горизонтали и 20мм по вертикали. С учетом положения эффективной точки камеры и поправке на неводоэквивалентность окна эффективная глубина расположения детектора в нулевом положении позиционера составляла $26\text{мм} \pm 0,1$. Пробег протонов в воде в приближении непрерывного замедления составил $258 \pm 0,1\text{мм}$, что соответствует средней энергии протонов 199.2 МэВ (по ICRU49 [3] и базе данных PSTAR [4]) После вывода профилометра Д2М пучок полностью пропал. Это указывает на то, что измерения были сделаны на рассеянном пучке, который полностью заполняет коллиматор защиты. Но поскольку пошли 3-и сутки настройки, не было надежды на получение лучшего результата вывода и было принято решение работать в данных условиях.

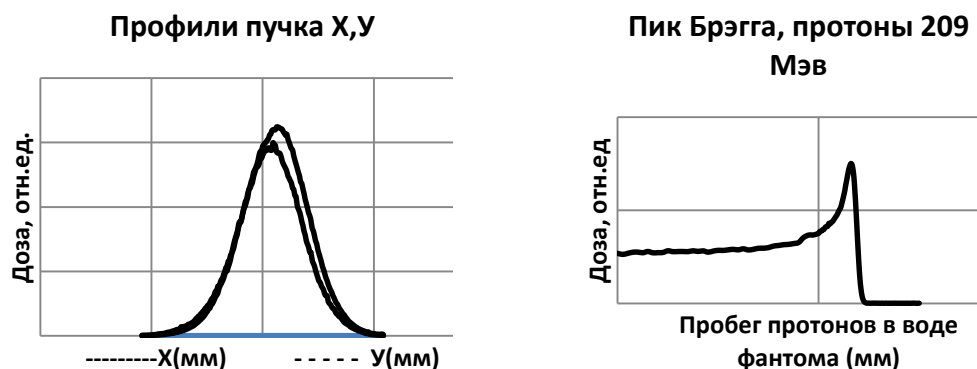


Рисунок 1.1.7 - Пробные профили пучка и глубинное дозное распределение

1.1.2.2 ИЗМЕРЕНИЯ С СИСТЕМОЙ ДВОЙНОГО РАССЕЯНИЯ

Для проведения измерений были установлены первый рассеиватель S_1 (400мкм Cu) на выходе графитового коллиматора и пленка GafchromicMD-V2-55 выход коллиматора защиты в процедурной (4) и на входное окно фантома (5).

Представленные профили X,Y пучка и дозное распределение в воде фантома соответствует рисунку 1.1.8.

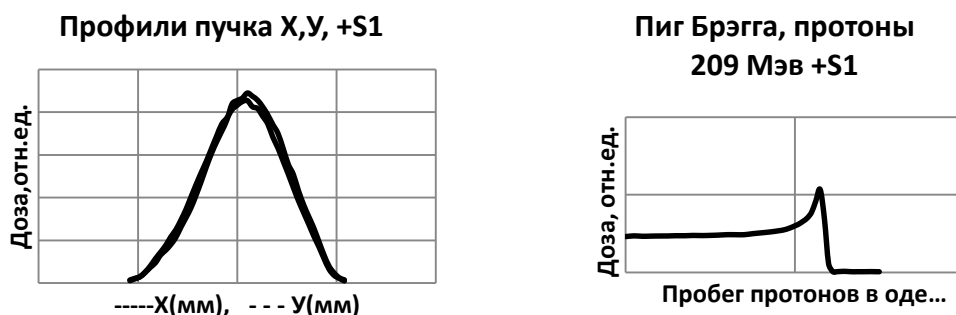


Рисунок 1.1.8 - Профили X,Y пучка и дозное распределение в воде

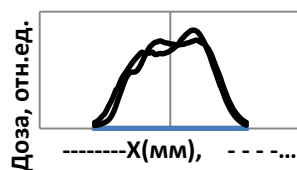
Профили показывают заданную величину уширения FWHM до 120мм по обеим координатам. Положение пика Брэгга составило 230 ± 0.1 мм. Что соответствует энергии протонов 198.2 МэВ. На пленке коллиматора в соответствии с рисунком 9 в центре заметно некоторое уплотнение засветки, а пленка фантома почти равномерно засвечена. Это можно объяснить действием гамма излучения от активации воды фантома и большим рассеянием пучка.



Рисунок 1.1.9 - Пленка GafchromicMD-V2-55 на выходе коллиматора защиты в процедурной (4) и на входное окно фантома(5)

02:30 установили вторичный рассеиватель S_2 , который был предварительно отъюстирован лазером по оси пучка. Варианты юстирования вторичного рассеивателя соответствуют рисунку 1.1.10.

**Профили пучка X,Y,
+S1+S2**



**Профили пучка
X,Y,+S1+S2**

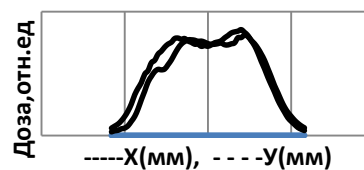


Рисунок 1.1.10-Варианты юстирования вторичного рассеивателя

Неравномерность плато профилей составило от 3 до 8,5% (между максимальным и минимальным значением на плато). Занижение дозы в центре профиля обусловлено применением медного вторичного рассеивателя и соответствует результатам, полученным при их проектировании [2]. Полученные профили можно считать приемлемыми с учетом дальнейшего влияния дополнительных формирующих приспособлений (гауссизации), приводящего к его выравниванию. Пробег протонов после прохождения системы двойного рассеяния был равен $241 \pm 0,1$ мм, что по данным NIST соответствует энергии 192 МэВ в соответствии с рисунком 1.1.11.

Пик Брэгга, протоны 209 Мэв +S1+S2



Рисунок 1.1.11 - Пробег пучка протонов энергии 192 МэВ по данным NIST

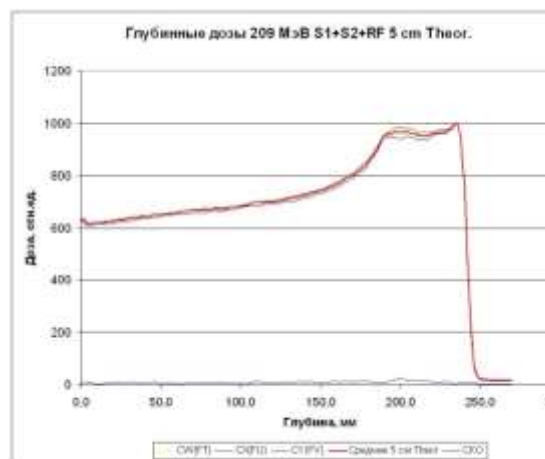
1.1.2.3 ИЗМЕРЕНИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ДОЗЫ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ГРЕБЕНЧАТЫХ ФИЛЬТРОВ

Для контроля воспроизводимости результатов предыдущего сеанса на пучок был установлен гребенчатый фильтр с модуляцией 50мм, который показал удовлетворительные параметры модифицированного пика Брэгга. Дозное распределение, полученное на этом сеансе соответствует рисунку 12(а), которое хорошо согласуется с предыдущими измерениями соответствует рисунку 12(б).

**Дозное распределение для
гребенчатого фильтра с
модуляцией 50мм для протонов
209 Мэв
(версия В.Н.Васильева)**



а)



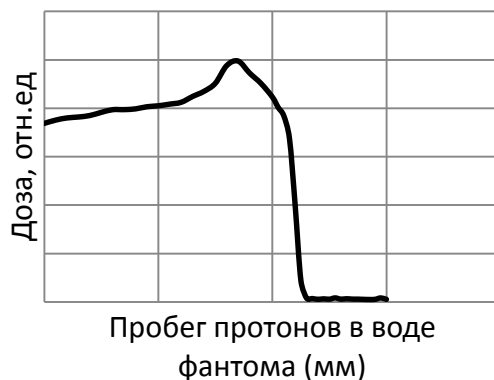
б)

Рисунок 1.1.12 - Распределения дозы, полученные на последнем (а) и на предыдущим сеансе (б)

Небольшой наклон плато или недостаток высокоэнергетической компоненты модифицированного пика Брэгга можно объяснить меньшей энергий 192Мэв и 198.8Мэв и большой расходимостью пучка.

Результаты измерения дозных распределений новых гребенчатых фильтров с модуляциями 50мм и 25мм, показаны на рисунке 1.1.13.

Chart Title



**Дозное распределение
для гребенчатого
фильтра с модуляцией
25мм для протонов
209Мэв**

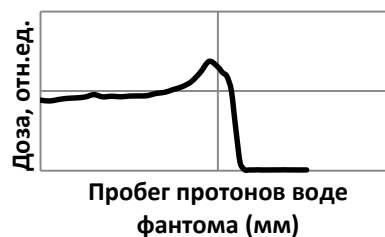
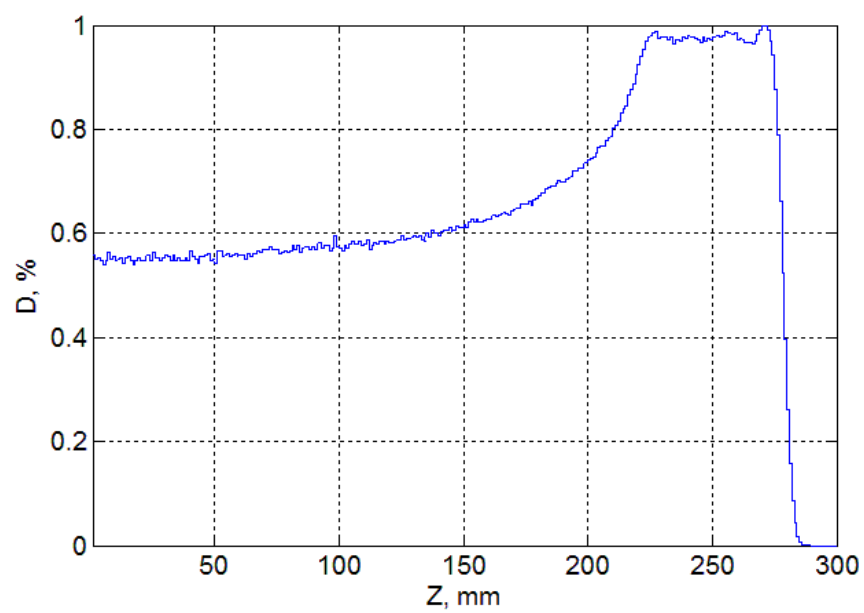
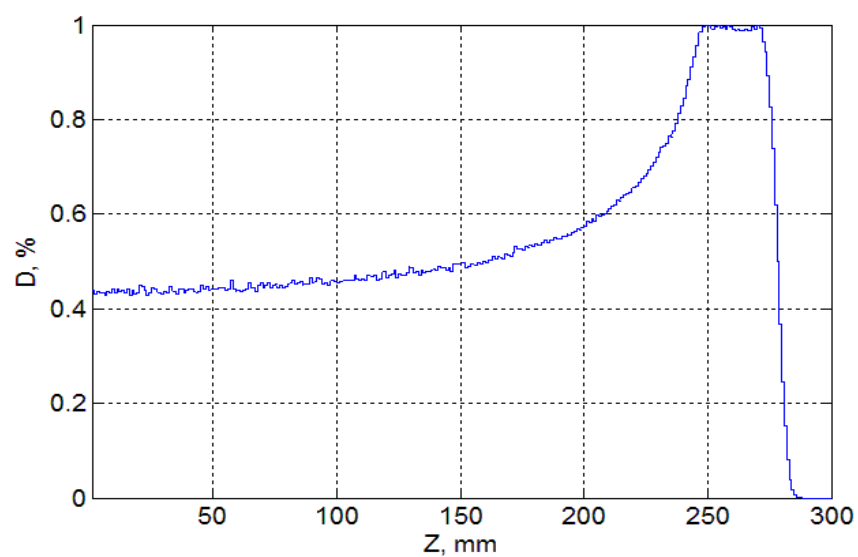


Рисунок 1.1.13 Распределения дозы при новых фильтрах

Для сравнения с измеренными дозными распределениями показаны расчетные значения, представленные на рис. 1.1.14.



Теоретическое глубинное распределение дозы для фильтра 50мм



Теоретическое глубинное распределение дозы для фильтра 25мм

Рисунок 1.1.14 Глубинные распределения дозы для новых фильтров

1.1.ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате измерения характеристик медицинских пучков протонов и их сравнения с рассчитанными значениями были получены следующие выводы.

1. Гребенчатые фильтры были рассчитаны с предположением, что пучок, сформированный в канале транспортировки, падает на элементы системы формирования параллельно и не имеет расхождения. Имевшее место изменение характеристик пучка могло привести к увеличению вклада замедленных частиц за счет увеличения доли свернувших с намеченной траектории и прошедших через дополнительный слой поглотителя соответствует рисунку 1.1.15.

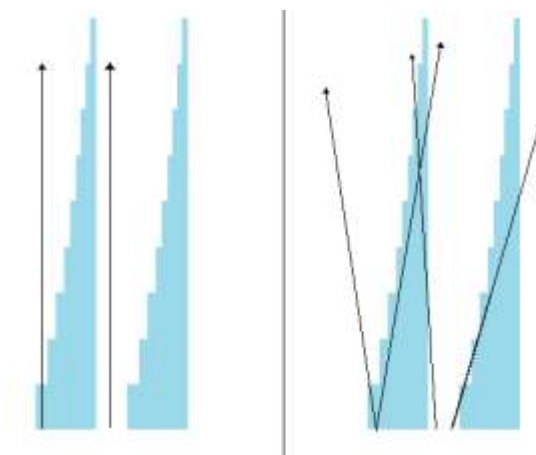


Рисунок 1.1.15 Траектории при отсутствии и наличии расхождения пучка

Таким образом, экспериментальное глубинное дозовое распределение может отличаться от расчетного в виде спада дозы в области дистального края модифицированного пика Брэгга. Решением данной проблемы может стать усложнение расчетной геометрии, включающее в себя введение в систему остальных формирующих устройств, таких как первичный и вторичный рассеиватели. Такой вариант позволит приблизиться к реальным условиям эксперимента, однако значительно увеличит время вычислений. Альтернативным методом может быть обновление программы SRNA, включающее возможность имитации расхождения пучка, однако такой подход не будет в полной мере соответствовать конфигурации реального пучка.

2. Запущен в работу анализатор «PTWT41029, который показал высокую эффективность набора дозовых распределений и надежность работы. Подтверждением чего служат спектры, представленные в данном отчете.

3. Проведены измерения радиационных фонов в помещениях КИТ. Протоколы измерений радиационных фонов представлены в приложении А.

4. Удовлетворительный по качеству пучок с энергией 209 МэВ исследовался визуально по люминофору в процедурной КПТ.

5. Для успешного проведения будущих сеансов работы ускорителя на КПТ требуется контроль направления пучка на заключительном участке ионопровода. Для этого необходимо установить на этом участке 2 прозрачных профилометра (многоканальные прозрачные пропорциональные камеры или детекторы, регистрирующих ионизацию остаточного газа).

1.1 СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Gottschalk B. NEU User Guide. Harvard University, 2006.
<http://huhepl.harvard.edu/~gottschalk>
2. Отчет по результатам сеанса на протонном пучке ИЯИ РАН 30.11.2010 – 03.12.2010 г, ИЯИ РАН, Москва, 2011.
3. Stopping powers and ranges for protons and alpha particles. ICRU Report 49, ICRU, Bethesda, 1993.
4. Berger M.J., Cousey J.S., Zucker M.A., Chang J. Stopping power and range tables for electrons, protons and helium ions. NISTIR 4999, 1993.
<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/PSTAR.html>.
5. Отчет по результатам сеанса на протонном пучке ИЯИ РАН 11.12.2011
6. С.В.Акулиничев, И.А.Яковлев, Р.Д.Илич, В.И.Ильин, «Повышение конформности лучевой терапии», Пленарный доклад на международной конференции «Радиационные технологии. Ядерная медицина» (Киргизия, октябрь 2016 г.)

1.1 ПУБЛИКАЦИИ

1. S.V.Akulinichev, R.D.Ilich and Y.A.Yakovlev, “Conformal proton therapy with passive scattering”, Radiotherapy & Oncology (Elsevier) v. 118 (2016), page S2.
2. С.В.Акулиничев, И.А.Яковлев, Р.Д.Илич, В.И.Ильин, «Повышение конформности лучевой терапии», Пленарный доклад на международной конференции «Радиационные технологии. Ядерная медицина» (Киргизия, октябрь 2016 г.)

1.1 Приложение А (протоколы измерений радиационных фонов)



1.2 Разработка технологии производства радиационного источника на основе иттербия-169 для брахитерапии

Руководитель темы: заведующий ЛМФ ИЯИ РАН С.В.Акулиничев

Ответственные исполнители:

Д.А.Коконцев

Т.С.Михайлова

С.А.Чаушанский

И.А.Яковлев

1.2 РЕФЕРАТ

БРАХИТЕРАПИЯ, РАДИОАКТИВНЫЙ ИСТОЧНИК, ИТТЕРБИЙ, ЛАЗЕРНАЯ ТЕХНОЛОГИЯ ВЫДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ

Цель работы - изучение свойств распределений поглощенной дозы в воздухе и водном фантоме, создаваемых высокодозным микроисточником отечественной разработки на основе иттербия-169, проведение доклинических исследований с культурами клеток человека. В процессе работы проводились расчеты поглощенной дозы, измерения дозиметрических параметров и поглощенной дозы в воздухе, анализ летального воздействия излучения иттербия на клетки.

В результате проведения исследований физико-дозиметрических характеристик микроисточников на основе иттербия-169 (с удельной активностью 185 ГБк) в воздухе и в водном фантоме показано:

- 1) Мощность экспозиционной дозы в воздухе на расстоянии 1 м от источника – 64,1 нА/кг,
- 2) Слой половинного ослабления поглощенной дозы в водяном фантоме – 0,9 см.

Измеренные дозиметрические данные аппроксимируются степенными функциями, хорошо совпадающими с расчетными, полученными на основе спектральных характеристик Yb-169.

Степень внедрения- ведутся работы по получению документов для работы с иттербиевыми источниками. Эффективность источников определяется удельной активностью и слоем половинного ослабления поглощенной дозы. Вывод: данный микроисточник может использоваться как для ВДБ, так и для НДБ.

1.2 ОПРЕДЕЛЕНИЯ

Брахитерапия - вид лучевой терапии, при котором облучение мишени проводится с короткого расстояния с помощью небольших герметично упакованных источников. В России этот вид лучевой терапии часто называют еще «контактной лучевой терапией».

1.2 ОБОЗНАЧЕНИЯ И СОКРАЩЕНИЯ

ЛТ - Лучевая терапия

ДЛТ - Дистанционная лучевая терапия

КЛТ - Контактная лучевая терапия

ВДБ - Высокодозная брахитерапия

НДБ - Низкодозная брахитерапия

1.2 ВВЕДЕНИЕ

Брахитерапия - метод, при котором радиоактивный источник размещается либо в естественные полости тела человека, либо непосредственно в патологически измененные ткани, благодаря чему радиационной нагрузке подвергается очень ограниченная область. Преимущество брахитерапии (контактной лучевой терапии) перед дистанционной лучевой терапией состоит в том, что поглощенная доза сконцентрирована в ограниченной зоне и окружающая нормальная ткань получает более низкую дозу радиации. Брахитерапия может быть реализована с источниками излучения различной мощностью дозы. При маленькой мощности дозы источники «пожизненно» размещают в патологический очаг. При средней и высокой мощностях доз – воздействие кратковременное.

В настоящее время за рубежом и в России брахитерапия подвергается качественной модернизации на базе нового арсенала технических средств. Совершенствование аппаратуры для введения источников, производство различных радионуклидов в широких масштабах привели к развитию методов брахитерапии, позволяющих подводить высокие дозы к ограниченному объему ткани за предельно короткое время.

Клинические преимущества применения высокой и средней мощности дозы при контактной аппаратной радиотерапии очевидны: возможность амбулаторного лечения, положение источника с высокой точностью контролируется во время всего сеанса облучения, пациент неподвижен в течение короткого промежутка времени, что уменьшает риск, связанный с развитием глубокого тромбоза вен и эмболии сосудов, которые могут развиваться, если пациент иммобилизован в постели в течение нескольких дней для процедуры.

Автоматическое дистанционное управление и защита обеспечивают полную радиационную безопасность обслуживающего персонала и больных.

В последнее время значительное число исследований посвящено изучению физико-дозиметрических характеристик микроисточников на основе иттербия-169 (^{169}Yb) ($T_{1/2} = 32$ суток, $E_{\text{ср}} = 93$ кэВ). Показана перспективность его использования в высокодозной брахитерапии злокачественных новообразований.

В случае ^{169}Yb и подобных в целевом использовании радиоизотопов, основная часть энергии испускаемого излучения ниже 200 кэВ, что делает необходимым учет ослабления в стенках капсулы, в слоях воздуха или других материалах, расположенных перед объектом облучения, а также изменения коэффициента абсорбции (сечений взаимодействия) с энергией, особенно при разнообразии долевого вклада различных энергий в полную энергию флюенса частиц. Отсюда проистекает необходимость изучения физико-дозиметрических свойств каждого нового типа источника (включая конфигурацию капсулы, содержащей источник, размеры и расположение изотопа в ней).

Задачей настоящей работы являлось физико-дозиметрическое изучение формирования поглощенной дозы в воздухе и водном фантоме высокодозным микроисточником отечественной разработки на основе иттербия-169.

1.2.1 ХАРАКТЕРИСТИКИ ВЫСОКОДОЗНОГО МИКРОИСТОЧНИКА НА ОСНОВЕ ИТТЕРБИЯ-169

Габаритные размеры капсулы:

диаметр- 0,9 мм;

длина – 4,0 мм.

Материалы корпуса капсулы – титан ВТ1-0.

Характеристики облучаемого материала, помещенного в корпусе титановой капсулы:

– химическая форма – оксид иттербия, обогащенный по изотопу ^{168}Yb , атомная концентрация изотопа иттербий-168 – 23,16 %;

– габаритные размеры облучаемого материала:

– диаметр- 0,6 мм;

– длина – 3,5 мм;

– масса иттербия в титановой капсуле – 12,5 мг;

– удельная активность радионуклида иттербий-169 не менее 1000 Ки/грамм.

Расчетная активность источника к моменту окончания облучения 12,5 Ки (при 100 % обогащении ^{169}Yb) или $12,5 \cdot 0,23 = 2,875$ Ки (при 23 % обогащении).

1.2.2 МЕТОДИКА РАСЧЕТА ПОГЛОЩЕННОЙ ДОЗЫ

Расчет поглощенной дозы проводился аналитическим методом, опираясь на данные МКРЗ-38 спектра излучений ^{169}Yb и данные библиотеки США - TORI data (таблица 1) [1, 2].

Таблица 1.2.1 Характеристики распада ^{169}Yb

МКРЗ-38		TORI data (1999)			
Е, кэВ	фотон/Бк	Е, кэВ	фотон/Бк	Е, кэВ	фотон/Бк
7,18	0,2030	6,341	0,008	57,505	0,192
8,18	0,2040	7,133	0,02	57,898	0,004
9,54	0,0343	7,18	0,185	59,028	0,065
49,8	0,5270	7,31	0,003	59,21	0,017
50,7	0,9320	8,026	0,013	63,121	0,442
57,3	0,0988	8,102	0,127	93,615	0,026
57,5	0,1910	8,176	0,002	109,78	0,175
59,1	0,0815	8,231	0,02	118,19	0,019
63,1	0,4160	8,41	0,003	130,524	0,113
93,6	0,0255	8,468	0,036	177,214	0,222
110	0,1740	9,437	0,023	197,958	0,358
118	0,0191	9,73	0,004	240,332	0,001
131	0,1150	9,779	0,006	261,079	0,017
177	0,2230	20,752	0,002	307,738	0,101
198	0,3590	49,773	0,532		
261	0,0168	50,742	0,94		
308	0,0987	57,3	0,099		
Сумма фотонов на распад	3,721				3,747
X(мР/ч) на 1 м	984				993
среднее значение				988,5	

В таблице 1.2.1 также приведены значения мощности экспозиционной дозы (X), вычисленной на расстоянии 1 м при активности источника 5 Ки (исходя из разных данных о характеристиках распада). Различие составляет менее 1 %.

Для проведения дальнейших расчетов использовали характеристики распада из TORI (1999). Спектр Оже-электронов в расчетах не учитывали вследствие их полного поглощения в оболочках источника.

Расчет поглощенных доз проводился по формуле:

$$D_{airc} = 0,5235 \cdot 10^{-8} \frac{G}{r^2} [\sum_i n_{\gamma} E_{\gamma} (\frac{\mu_{en}(E)}{\rho})_i] \Pi_j (\exp(-\mu_j t_j) B_j, \quad (1)$$

где: $0,5235 \cdot 10^{-8}$ – цифровой коэффициент, учитывающий константы преобразования единиц измерения деленные на 4π ;

G – число распадов в секунду;

r – расстояние до источника в метрах (принят точечным и изотропным).

n_{γ} – число фотонов с энергией E_{γ} на 1 распад;

$\mu_{en}(E_{\gamma})/\rho$ – массовый коэффициент поглощения излучения (поглощенная доля потока энергии, m^2/kg);

μ_j – коэффициент линейного ослабления для j -го материала толщиной t_j ,

B_j – коэффициент накопления, характеризующий эффекты многократного рассеяния излучения в среде.

1.2.3. ТЕХНИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ ДОЗИМЕТРИЧЕСКОГО ОБОРУДОВАНИЯ

Измерения выполнялись с помощью дозиметров:

- ДКС-101 (с ионизационной камерой БМК-06);
- клинический дозиметр 27012 (со сферической ионизационной камерой VA-K-253).

1.2.3.1 УНИВЕРСАЛЬНЫЙ ДОЗИМЕТР ДКС-01

Дозиметр обеспечивает следующие типы измерений: поглощенная доза в воде (Гр), эквивалентная доза (Зв), соответствующие мощности дозы, заряд (Кл), ток (А). Дозиметр имеет автоматическую остановку измерений при достижении заданных порогов по дозе и времени. Состоит из электрометрического блока со встроенным управляемым высоковольтным источником и персонального компьютера. Комплектуется ионизационными камерами объемом $0,6 \text{ см}^3$, 50 см^3 , 500 см^3 , электрометрическим удлинителем и штативом.

Цифровое разрешение, стабильность нуля, диапазон напряжения высоковольтного источника и максимальное время измерения дозиметра приведены в таблице 1.2.2. Диапазоны измерений представлены в таблице 1.2.3.

Таблица 1.2.2 Технические характеристики дозиметра ДКС-01

Параметр	Значение
Цифровое разрешение при измерении тока	1 фА (10^{-15} А)
Цифровое разрешение при измерении заряда	1 фКл (10^{-15} Кл)
Стабильность нуля (без подключения ионизационной камеры)	± 5 фА (реально ± 2 фА)
Максимальное время измерения	до 32000 с (≈ 9 ч)
Напряжение высоковольтного источника	40...600 В

Таблица 1.2.3 Значения диапазонов измерения дозиметра ДКС-01

Параметр	Значение
Ток	
чувствительный диапазон	0,1 – 200 нА
средний диапазон	0,2 - 20 нА
грубый диапазон	0,02 - 2 мкА
Заряд (метод интегрирования)	
чувствительный диапазон	1 пКл - 6,4 мкКл
средний диапазон	0,4 нКл - 640 кКл
грубый диапазон	40 нКл - 64 мКл
Заряд (на конденсаторе)	
чувствительный диапазон	1 - 1000 пКл
грубый диапазон	1 - 100 нКл

На рисунках 1.2.1 и 1.2.2 представлены внешний вид и размеры ионизационной камеры БМК-06, соответственно.



Рисунок 1.2.1 Ионизационная камера БМК-06 для дозиметра ДКС-101

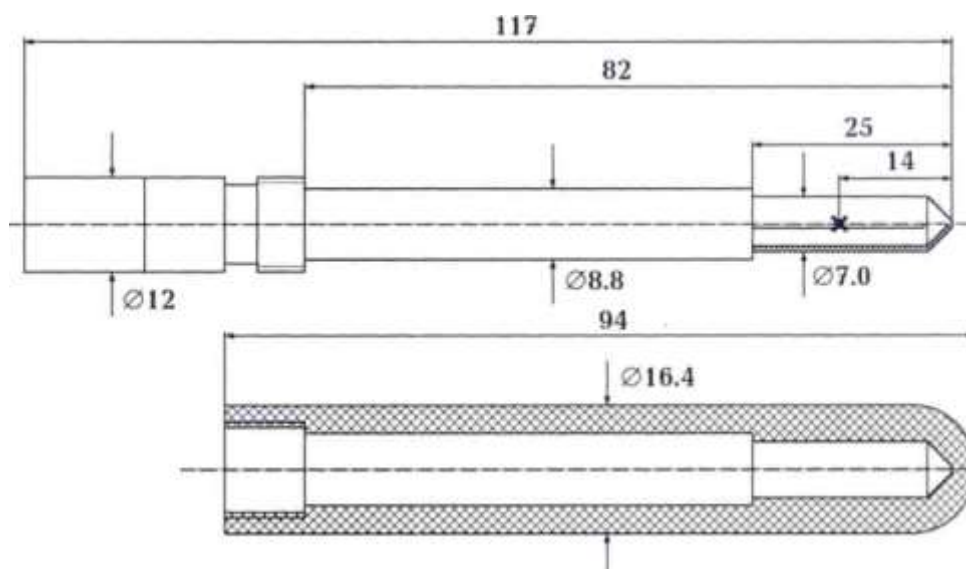


Рисунок 1.2.2 Габриты ионизационной камеры БМК-06

1.2.3.2. КЛИНИЧЕСКИЙ ДОЗИМЕТР 27012

Клинический дозиметр 27012 является радиометрическим прибором, который пригоден для клинического применения в лучевой терапии и диагностике. Благодаря своему большому диапазону измерения он может быть использован при применении соответствующих камер также для измерительно-технического контроля при радиобиологических экспериментах, для дозиметрических измерений и измерений в других областях. Прибор позволяет выполнять измерение как дозы, так и измерение мощности дозы рентгеновского и гамма-излучения в широкой степени независимо от энергии и направления. В клиническом дозиметре 27012 применены исключительно полупроводники и частично интегральные схемы в кремниевой технике, поэтому прибор обладает высокой надежностью и продолжительностью работы.

В качестве детекторов излучения применяются ионизационные камеры. Имеются следующие детекторы излучения для клинического дозиметра 27012: шланговая камера VA-K-251, стержневая камера с прямым стержнем VA-K-252.1, стержневая камера с изогнутым стержнем VA-K-252.2, сферическая камера VA-K-253, дозиметрическая камера VA-K-254, камера мягкого излучения. Технические данные дозиметра представлены в таблице 1.2.4.

Таблица 1.2.4 Значения диапазона измерения дозиметра 27012

Тип камеры	Диапазоны дозы	Диапазоны мощности дозы
VA-K-251 VA-K-252.1 VA -K-252.2	30; 100; 300; 1000; 3000; 10000 Р	10; 33,3; 100; 333; 1000; 3330 Р/мин
VA -K-253	1; 3; 10;30;100;300 Р	0,33; 1; 3,33; 10; 33,3; 100 Р/мин
VA -K-254	1,5; 5; 15; 50; 150; 500 мР	30; 100; 300; 1000; 10000 мР/час

1.2.4. ДОЗИМЕТРИЧЕСКИЕ ИЗМЕРЕНИЯ В ВОЗДУХЕ

Геометрия эксперимента представлена на рисунке 1.2.3.

Работы происходили в специально оборудованной комнате, за защитными свинцовыми блоками и с помощью манипулятора, используемого для перемещения источника излучения. Источник излучения находился в специальном свинцовом контейнере, содержащем металлический стержень, на который он крепится. Контейнер был установлен на штативе, относительно него и проводились измерения, путем передвижения ионизационной камеры на расстояние 1 м от него (рисунок 1.2.4).

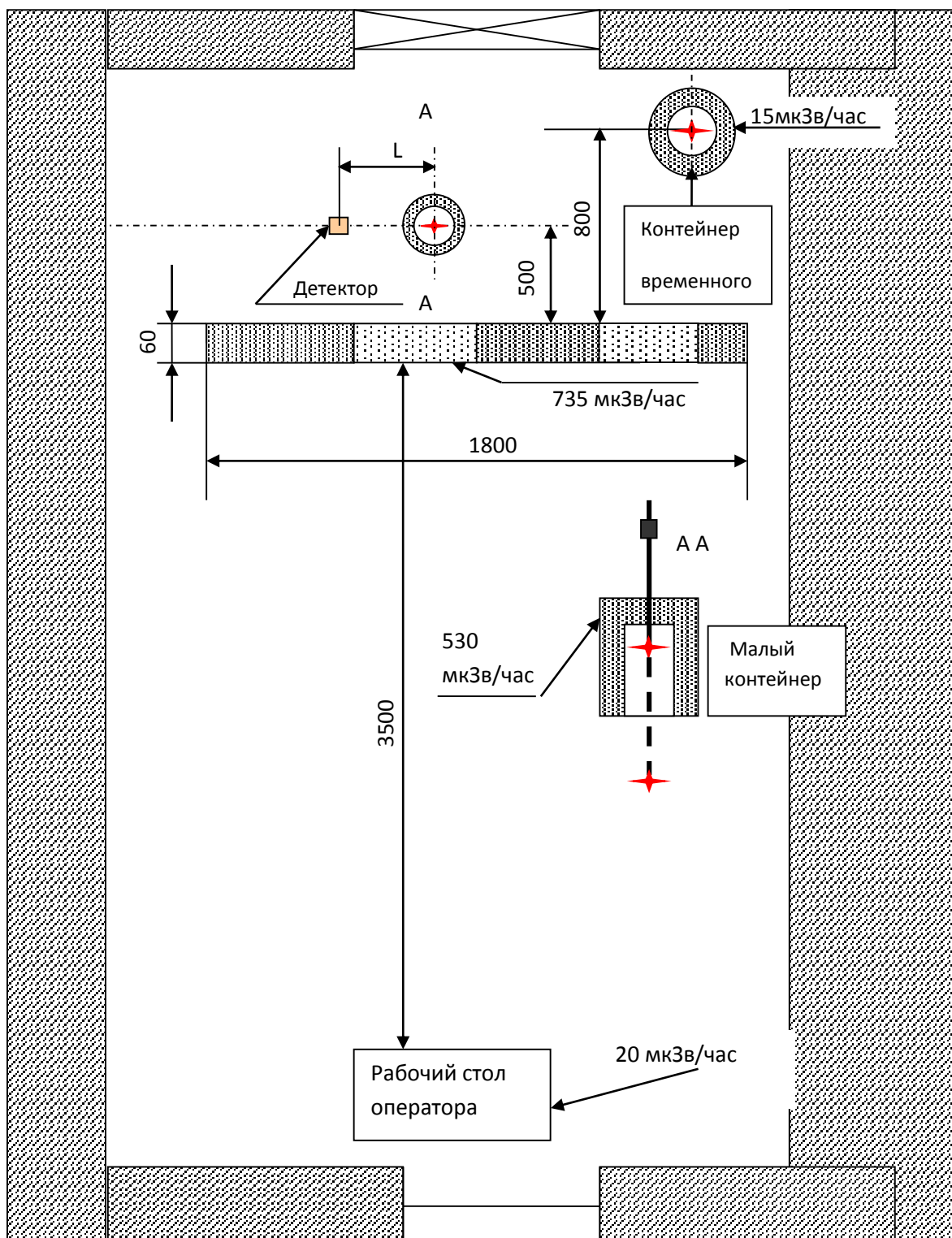


Рисунок 1.2.3 Геометрия эксперимента и картограмма измерения мощности дозы на рабочем месте.

Работы происходили в специально оборудованной комнате, за защитными свинцовыми блоками и с помощью манипулятора, используемого для перемещения

источника излучения. Источник излучения находился в специальном свинцовом контейнере, содержащем металлический стержень, на который он крепится. Контейнер был установлен на штативе, относительно него и проводились измерения, путем передвижения ионизационной камеры на расстояние 1 м от него (рисунок 1.2.4).

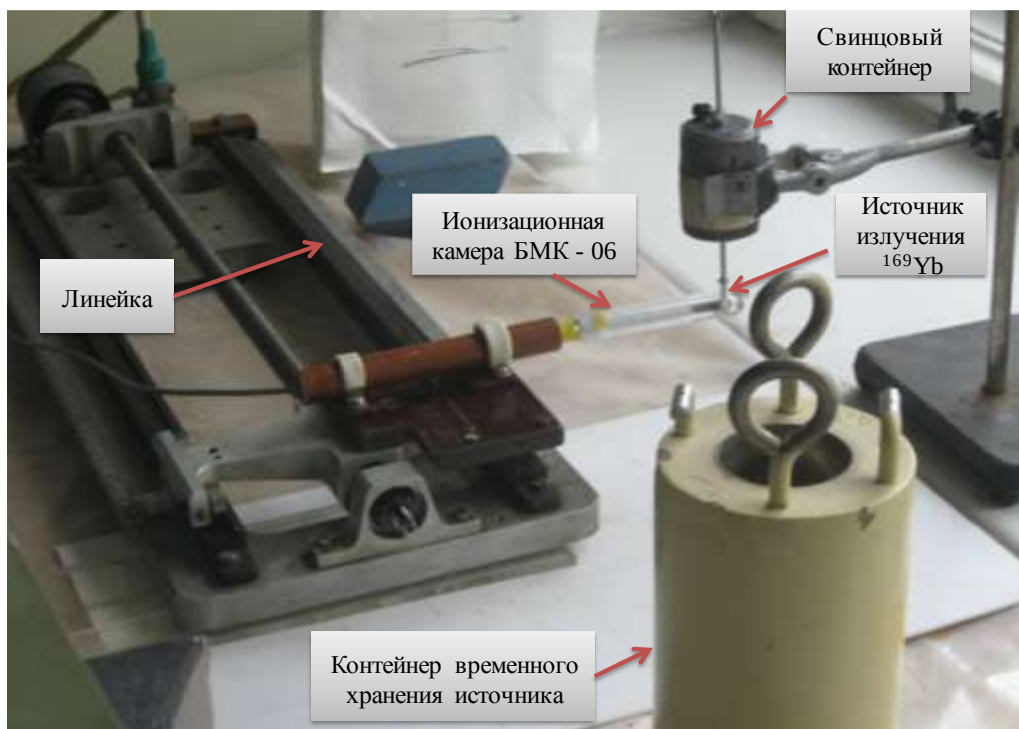


Рисунок 1.2.4 Изображение установки дистанционного перемещения детектора при измерении экспозиционной дозы от источника иттербия-169

Экспериментальные исследования в воздухе были выполнены с двумя ионизационными камерами с воздушным наполнением: сферической VA-K-253 с рабочим объемом $1,5 \text{ см}^3$, стенки из воздухоэквивалентного пластика толщиной $0,17 \text{ г/см}^2$ (клинический дозиметр 27012) и цилиндрической графитовой камерой БМК-06, с чувствительным объемом $0,6 \text{ см}^3$ и стенками толщиной $0,6 \text{ мм}$ (дозиметр ДКС-101). Толщина стенок в обеих камерах практически достаточна для соблюдения условий электронного равновесия при измерении излучения иттербия-169 в воздухе ($E_{\gamma\text{max}} \sim 300 \text{ кэВ}$).

На рисунке 1.2.5 приводится сравнение расчетных и экспериментальных данных распределения воздушной кермы.

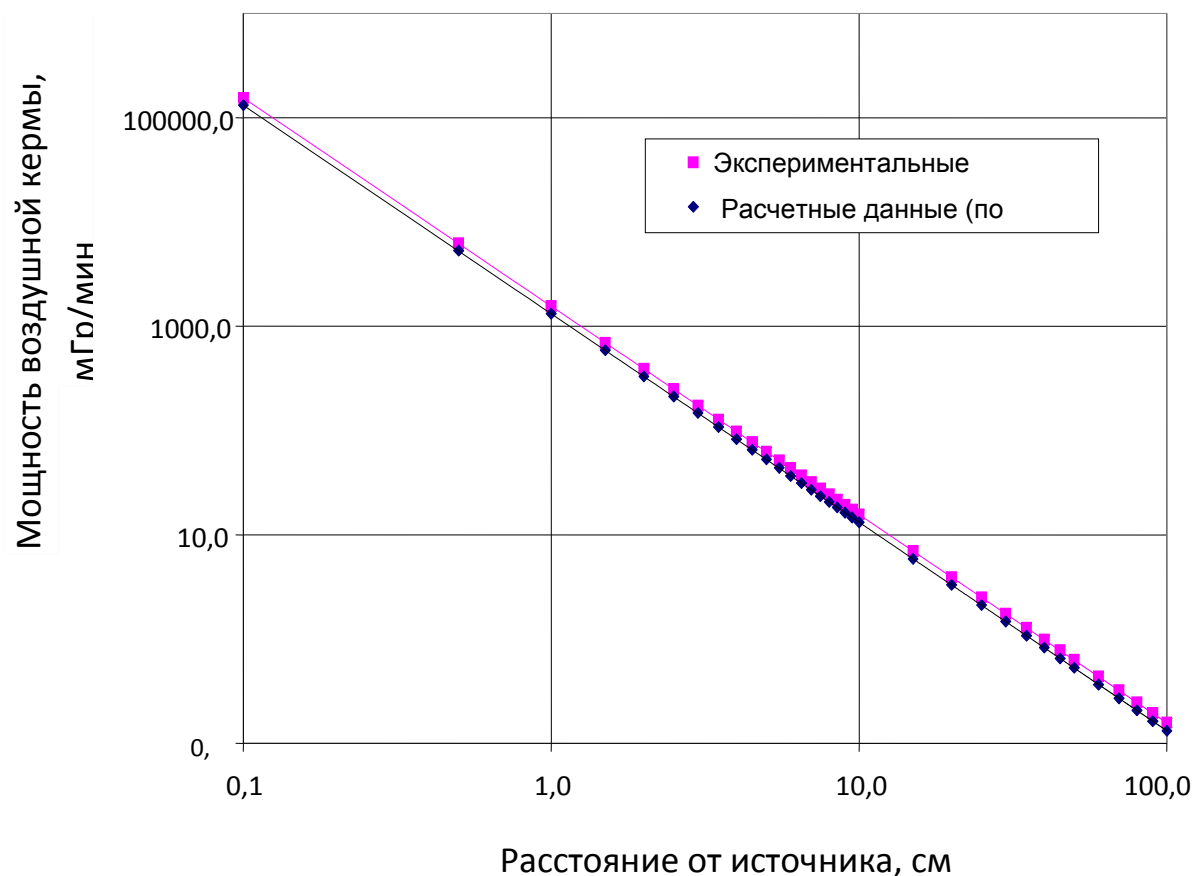


Рисунок 1.2.5 Экспериментальные и расчетные данные для мощности воздушной кермы на разных расстояниях от источника ^{169}Yb . МЭД – мощность экспозиционной дозы

1.2.5. ГЛУБИННОЕ ИЗМЕРЕНИЕ ПОГЛОЩЕННОЙ ДОЗЫ В ВОДНОМ ФАНТОМЕ ОБЪЕМОМ 1 Л

Измерение поглощенных доз в водном фантоме проводилось практически так же, как и измерение кермы в воздухе. Работы происходили в той же комнате, только такой защиты из свинцовых блоков уже не требовалось, так как источник излучения находился в кубе, наполненном водой. Ионизационную камеру перемещали в кубе по диагонали для получения наибольшего количества измерений.

На рисунке 1.2.6 приведена фотография экспериментальной установки для измерения поглощенной дозы в водном фантоме объемом 1 л.

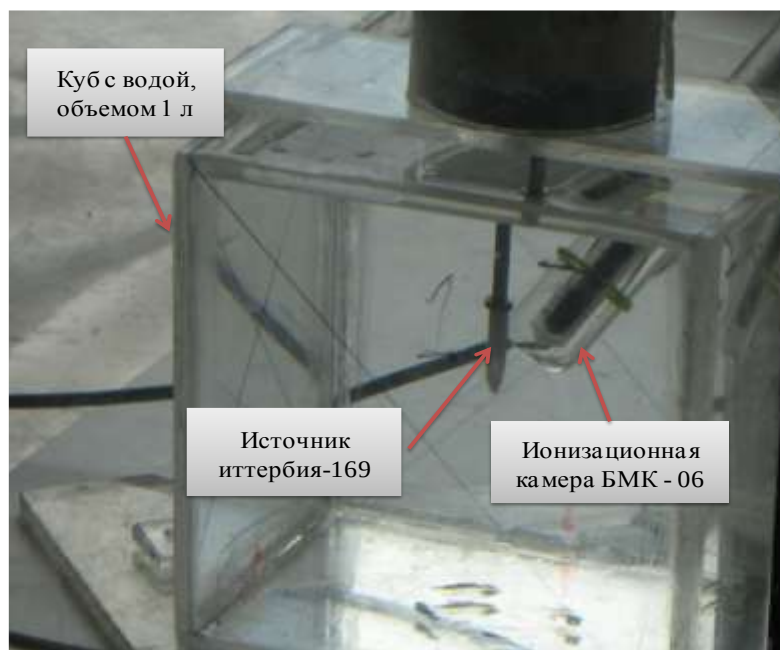


Рисунок 1.2.6 Водяной фантом с установленным в центре источником иттербия-169 для измерения поглощенной дозы

Источник находился в свинцовом контейнере, из него источник извлекается путем движения металлического стержня, на котором он крепится. Показания ионизационной камеры снимали, передвигая ее на расстояние до 10 см.

На рисунке 1.2.7 представлены результаты измерения поглощенной дозы в воде (дозиметр 27012) в сравнении с расчетными данными. Расчет проводился по формуле (1). Коэффициент накопления рассчитывался по формуле: $B = 1 + K_a (\mu * L)^{K_b}$ (формализм Komelsen & Yong) [3, 4], значения коэффициентов: $K_a = 1,542$ и $K_b = 1,235$ взяты из значений, приведенных для ^{192}Ir , μ - линейный коэффициент ослабления в воде [5]. Поскольку коэффициент накопления B обусловлен многократным рассеянием, то фотопоглощение исключалось путем введения коэффициента, определяющего долю комптоновского рассеяния в полном коэффициенте ослабления. Все данные, как измеренные, так и расчетные, представлены в перерасчете на 5 Ки. Следует отметить хорошее согласие экспериментальных и расчетных данных, что свидетельствует о правильности примененной нами методики расчета.

Слой половинного ослабления поглощенной дозы в воде составил 9 мм.

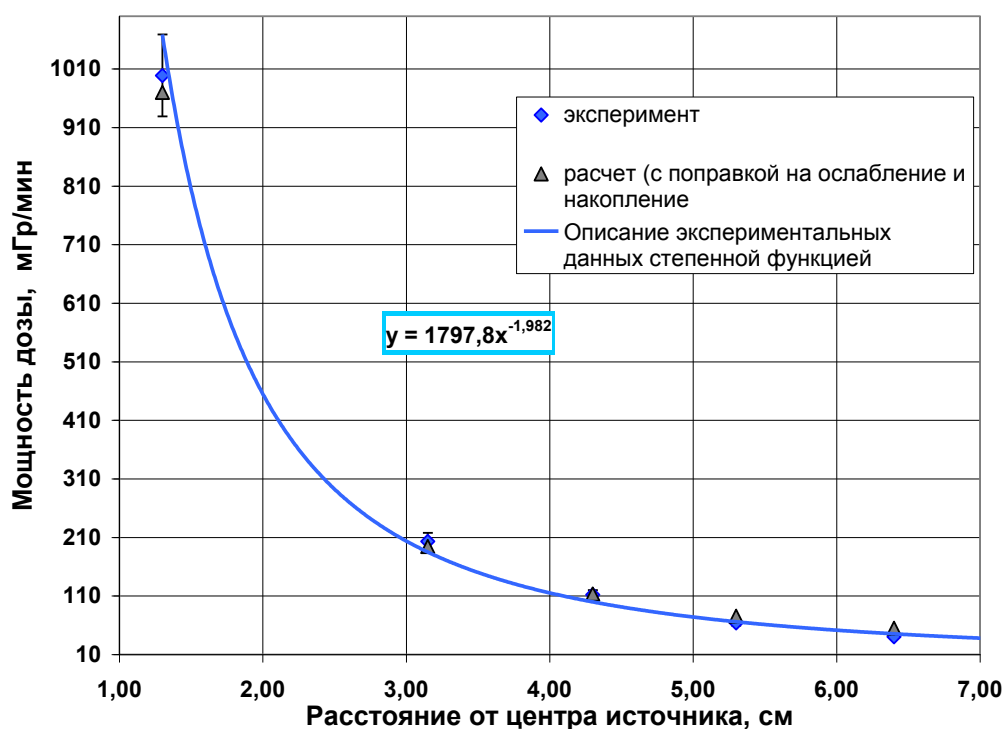


Рисунок 1.2.7 Измерение мощности поглощенной дозы в водном фантоме. Результаты, представлены в перерасчете на 5 Ки

1.2 ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в результате проведения исследований физико-дозиметрических характеристик микроисточников на основе иттербия-169 (с удельной активностью 185 ГБк) в воздухе и в водном фантоме показано:

- 1) Мощность экспозиционной дозы в воздухе на расстоянии 1 м от источника – 64,1 нА/кг,
- 2) Слой половинного ослабления поглощенной дозы в водяном фантоме – 0,9 см

Измеренные дозиметрические данные аппроксимируются степенными функциями, хорошо совпадающими с расчетными, полученными на основе спектральных характеристик Yb-169.

Измеренные параметры иттербиевых источников удовлетворяют основным радиационным требованиям брахитерапии.

Выводы: Разработанные иттербиевые источники обладают всеми основными требованиями, предъявляемыми к медицинским источникам для контактной лучевой терапии. После проведения клинических испытаний, эти источники можно будет рекомендовать для применения в медицине.

1.2 СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Схема распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения. Публикация 38 МКРЗ, в 2-х ч. Пер. с англ. – М.: Энергоатомиздат, 1987.
2. <http://nucleardata.lu.se/toi/>
3. Методика проверки по мощности дозы экспозиционной дозы и мощности кермы в воздухе. Методические рекомендации ГОСТ 8-087-2000, Минск, 2002г.
4. Белорусский протокол для определения поглощенной дозы в лучевой терапии ортовольтового излучения с энергией фотонов ниже 0,3 МэВ. Методические рекомендации, Минск, 1999г.
5. *Козлов В.Ф.* Справочник по радиационной безопасности. 3-е изд. – М.: Энергоатомиздат, 1987, 191 с.

1.2 СПИСОК ПОДГОТОВЛЕННЫХ ПУБЛИКАЦИЙ

1. С.В.Акулиничев, В.И.Денисенко, В.И.Держиев, Д.А.Коконцев, Т.С.Михайлова, С.А.Чаушанский, И.А.Яковлев, «Перспективы брахитерапии с иттербиевыми источниками», Пленарный доклад на международной конференции «Радиационные технологии. Ядерная медицина» (Киргизия, октябрь 2016 г.).
2. С.В.Акулиничев, О.И.Андреев, С.А.Артамонов, В.И.Держиев, Е.Г.Романов, В.А.Тарасов, И.С.Тычкин, С.А.Чаушанский, «Облучение иттербиевых микроисточников на реакторе СМ-3», принято к опубликованию в журнале «Атомная энергия» (2016).
3. S.V.Akulinichev, S.A.Chaushansky and V.I.Derzhiev, "Toward brachytherapy with ytterbium sources", Radiotherapy & Oncology (Elsevier) v. 118 (2016), page S1

2 Радиоизотопные исследования

Руководитель работы:

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

Ответственные исполнители:

Зав. сектором, канд. техн. Наук Ермолаев С.В. (раздел 1,2,3,4,5)

Главный инженер установки Габриелянц Ю.Г. (раздел 1)

Научный сотрудник канд. хим. Наук Чудаков В.М. (раздел 2)

Исполнители:

Научный сотрудник Скасырская А.К. (раздел 3, 4)

Научный сотрудник канд. хим. Наук Лапшина Е.В. (раздел 1,3)

Младший научный сотрудник канд. хим. Наук Васильев А.Н. (раздел 3)

Стажер-исследователь Остапенко В.С. (раздел 3)

Младший научный сотрудник Кобцев А.А. (раздел 1, 5)

2 РЕФЕРАТ

Отчет 45 с., 25 рис., 5 табл., 14 источников

РАДИОИЗОТОПНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

Объектом исследования являются радиоизотопные продукты и процессы их образования, которые происходят при взаимодействии протонов средних энергий (в данном случае, энергия 160 МэВ и ниже) с различными материалами (мишенями). Целью работ является изучение закономерностей в этих процессах, в особенности, 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. Общий подход состоит в том, что различные мишени облучают на линейном ускорителе ИЯИ РАН, изучаются и оптимизируются режимы облучения и конструкция мишеней. Изучаются механизмы ядерных реакций, приводящие к образованию радиоизотопов. Изучаются полученные радиоизотопные продукты и разрабатываются методы их радиохимического выделения из облученных мишеней. Изучается возможность использования полученных радионуклидов для медицинского применения для радиоизотопной диагностики и терапии различных заболеваний, в частности, с использованием генераторов изотопов.

Получены следующие основные результаты:

1. Совместно с Лос-Аламосской национальной лабораторией (США) продолжено изучение зависимости выходов медицинского изотопа стронция-82 от

режима облучения рубидиевых мишеней при высоких токах протонного пучка и при различной форме и смещении пучка. Внедрены элементы российской технологии получения стронция-82 в фирме ZEVACOR (США), где начинается регулярное производство продукции, которая будет поставляться в фармацевтические и медицинские учреждения США и России.

2. Исследованы характеристики генератора стронций-82/рубидий-82, изготавливаемого по технологии ИЯИ РАН в России – РНЦРХТ (С-Петербург) и во Франции - ARRONAX GIP/NAOGEN PHARMA (г. Нант), и используемого при диагностике кардиологических и онкологических заболеваний методом позитронной эмиссионной томографии (ПЭТ). Изучены особенности взаимодействия сорбента гидратированного диоксида олова в генераторе рубидия-82. На основе этого продемонстрирована возможность изготовления генераторов рубидия-82 с увеличенной общей рабочей ёмкостью за счёт изменения конструкции генераторной колонки, что позволит увеличить производительность генератора рубидия-82 без изменения внешней конструкции, повысит его надёжность в ПЭТ-диагностике.

3. Проведены работы ИЯИ РАН совместно с МГУ им. М.В. Ломоносова по усовершенствованию методики получения медицинских радионуклидов актиния-225, радия-223 а также протактиния-230, из металлического тория, облученного протонами средних энергий. Изучена радиационная стойкость экстракционно-хроматографических сорбентов используемых в методике выделения. Изучено влияние pH раствора на эффективность меченая частиц гидроксиапатита, являющегося перспективным носителем для новых радиофармпрепаратов, радионуклидом ^{223}Ra . Изучено экстракционно-хроматографическое поведение ^{230}Ra на некоторых экстракционно-хроматографических сорбентах.

4. Получены экспериментальные значения сечений продуктов деления тория при облучении протонами с энергиями 141-21 МэВ, и изучена конкуренция каналов симметричного и асимметричного деления тория.

5. Получены экспериментальные сечения радиоизотопов теллура, образующихся в основном и метастабильном состоянии (^{119g}Te , ^{119m}Te , ^{121g}Te , ^{121m}Te) при облучении сурьмы (натуральной и обогащенной - ^{123}Sb и ^{121}Sb) протонами средних энергий и произведено сравнение с теоретическими значениями, рассчитанными с использованием новой систематики для изомерных соотношений.

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 $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$, $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ и $^{223}\text{Ra}/^{211}\text{Pb}$, при эксплуатации которых получают короткоживущие медицинские радионуклиды, являющиеся продуктом радиоактивного распада долгоживущих.

На установке облучения мишеней проводятся также фундаментальные исследования – изучение механизмов ядерного взаимодействия путем измерения сечения образования радионуклидов в различных мишенях, облученных протонами с энергией ниже 160 МэВ.

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 2016 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 X или по оси Y, а также меняли размеры пучка по X и по Y. Облученные мишени были направлены на радиохимическую переработку в ЛАНЛ, где определялся выход стронция-82 в каждой мишени, а также потери при химической переработке. Потери при химической переработке зависят от параметров облучения, так как в определенных случаях стронций необратимо сорбируется на внутренней поверхности оболочки и не может быть извлечен.

Показано, что при оптимизации формы и положения пучка выход наработки стронция-82 на интенсивном пучке порядка 120 мкА достигает 0,47-0,48 мКи/мкА·ч. Но эта величина весьма чувствительна к параметрам пучка протонов.

Проведена модернизация мишенного устройства – заменен графитовый держатель мишеней на более надежный, что несколько изменило геометрию облучения мишеней.

Зависимость выхода стронция-82 от параметров облучения требует дополнительного изучения.

2.1.2 Внедрение технологии получения стронция-82 на научно-производственных предприятиях во Франции и США

В рамках Соглашения о научно-техническом сотрудничестве между ИЯИ РАН и Французским научно-медицинским центром Арронакс ГИП - «Научные исследования и разработки по получению и химическому выделению стронция-82 из мишеней металлического рубидия» (от 5 февраля 2010 г.) были завершены работы по внедрению технологии облучения на пучке протонов мишеней из металлического рубидия и выделения ^{82}Sr в горячих камерах Арронакс (г. Нант) методом прямой сорбции из жидкого металла. В Арронаксе работает ускоритель протонов с энергией 70 МэВ (производство фирмы IBA). По новой технологии выход стронция-82 составляет около 0,3 мКи/мкА·ч при токе около 150 мкА (имеется два пучка протонов одновременно). В результате выхода на производственную мощность и начала коммерческих поставок по методу ИЯИ РАН согласно подписанному лицензионному соглашению Институт получит роялти за 2016 г.

Проведены работы согласно действующему Генеральному соглашению об услугах консалтинга между «Глобал Изотопс ЛЛК ДБА Зевакор Молекуляр» (Global Isotopes LLC DBA Zevacor Molecular) и Институтом ядерных исследований Российской академии наук, от 10 дек 2015 г. В фирме Зевакор (штат Индиана, США) также установлен ускоритель протонов с энергией 70 МэВ производство фирмы IBA. В результате совместной деятельности разработана рубидиевая мишень новой конструкции, которую уже облучают на пучке протонов с током 180-200 мкА (пока доступно облучение только на одном выводе пучка), выход также составляет 0,30 мКи/мкА·ч.

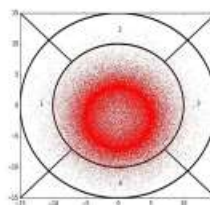
Расчеты, проведенные ИЯИ РАН для новой мишени, показаны на *рис.1*.

CALCULATION OF BEAM POSITION ON Rb-TARGET

Beam parameters:

$\sigma = 3.1$ mm
 Collimator diameter: 20 mm
 Diameter of beam rotation: 10 mm
 Shift of beam spot center: 2 mm down

Calculated beam position



Calculated signals on collimator sections:

Up 0.13 %
 Down 2.80%
 Left 0.76%
 Right 0.76%
 Total beam losses 4.44%

Calculated temperature distribution in Rb-metal ($T_{max} = 400^\circ\text{C}$ at 200 μA)

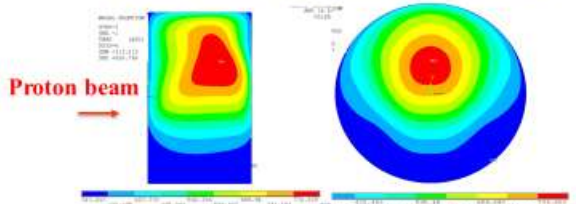


Рисунок 2.1.1 Распределение пучка и температуры в мишени из металлического рубидия, используемой в Зевакор.

Коммерческие поставки стронция-82 планируется начать в ближайшее время. Химическая переработка производится пока по старой методике, разработанной ИЯИ РАН совместно с Лос-Аламосской национальной лабораторией в середине 90-х годов. Однако, руководство компании декларирует намерение перейти в дальнейшем на новый метод выделения прямой сорбцией из металлического рубидия, который защищен патентом ИЯИ РАН и может быть внедрен с участием другой американской компанией MIT (Луббок, Техас) согласно подписанному лицензионному соглашению с ИЯИ РАН.

Результаты работы Зевакор и ИЯИ РАН были представлены в совместном докладе на международной научной конференции CAARI 2016 (Oct. 30–Nov. 4, 2016. Worth, Texas, USA).

2.2 Модернизация генератора рубидия-82 и изучение режимов его эксплуатации

В рамках действовавшего научного соглашения между ИЯИ РАН, Российским научным центром радиологии и хирургических технологий Министерства здравоохранения Российской Федерации (РНЦРХТ), соглашения с научно-медицинским центром ARRONAX GIP от 9 февраля 2009 г. и заключенного нового Соглашения о партнерстве между ИЯИ РАН и французской фирмой NAOGEN PHARMA (от 24 мая 2016 г.) продолжены работы по внедрению совместно разработанного генератора рубидия-82 и совершенствованию его конструкции для с целью увеличения его рабочей емкости.

Генератор представляет собой устройство, основной частью которого является ионообменная колонка, содержащей специальный сорбент, на который наносится исходный изотоп стронций-82 (период полураспада 25,5 дн.). В процессе эксплуатации генератора с колонки смывают физиологическим раствором короткоживущий продукт распада стронция-82 – рубидий-82 (период полураспада 1,3 мин.) и вводят в организм пациента. Рубидий-82 претерпевает позитронный распад с испусканием гамма-квантов, которые регистрируются в сканере позитронно-эмиссионной томографии (ПЭТ). Метод позволяет проводить раннюю диагностику ряда кардиологических заболеваний и в перспективе – некоторых онкологических и неврологических заболеваний. Он не требует, как это необходимо при других подходах в ПЭТ, наличия специального циклотрона вблизи клиники и имеет также ряд других преимуществ по сравнению с более распространенными методами ядерной медицины. Однако, ввиду недостатка исходного изотопа стронция-82 и несовершенства единственной широко используемой конструкции генератора фирмы Вгассо, этот генератор широко используется только в США. Партнер ИЯИ РАН - РНЦРХТ впервые в Европе и Азии завершил клинические испытания генератора и зарегистрировал его как медицинское изделие. Ведутся совместные работы по массовому внедрению генератора, разработанного ИЯИ РАН, в России и Франции.

2.2.1 Разработка новой конструкции колонки

Цель данной работы – повышение надежности генератора (уменьшение вероятности нежелательного попадания изотопов стронция в кровеносную систему пациента при проведении диагностической процедуры) и увеличение общего количества пациентов, которые могут быть обследованы с помощью одного генератора рубидия-82 при диагностике кардиологических и онкологических заболеваний методом ПЭТ.

Важнейшая характеристика генератора, которая это определяет - максимальный объем физиологического раствора (0,9% NaCl), который можно пропустить через генератор до появления в элюате (радиодиагностическом средстве на основе рубидия-82)

недопустимого количества стронция-82 или стронция-85 («проскок стронция») – важнейшая характеристика генератора, которая зависит от многих параметров, в частности, от внутреннего объема колонки с сорбентом. Ранее в качестве стандартной использовалась колонка объемом 1,6 см³.

Для исследования были использованы 4 разных колонки с разным внутренним объемом (**Табл. 1**). Колонки отличались размерами трубки генераторной колонки (внутренний диаметр и длина) и, соответственно, величиной ионообменной ёмкости размещаемого в ней сорбента на основе гидратированного оксида олова (IV) (ГДО). В таблице 2.2.1 приведены размеры использовавшихся колонок.

Таблица 2.2.1 Габариты колонок, использованных в эксперименте.

№ колонки	Внешний диаметр трубки, см	Внутренний диаметр трубки, см	Длина трубки, см	Внутренний объем трубки, см ³	Масса сорбента в трубке, г
1	1,27	1,17	2,7	2,90	8,4
2	0,95	0,40	2,7	0,34	1,0
3	0,95	0,87	2,7	1,60	4,8
4	1,27	1,17	4,6	4,94	14,8

Колонки №№1-3 имеют одинаковую длину, но разный внутренний диаметр. Колонки №1 и №4 имеют одинаковый внутренний диаметр, но разную длину. Для фиксации трубки генераторной колонки с сорбентом применяли однотипные фитинги с разным размером внутренней полости. Внешние габариты колонок №1 и №4 и №2 и №3 попарно одинаковы. Внешний вид этих колонок представлен на рис. 2.2.2.



Рисунок 2.2.2 Внешний вид колонок №2 и 3 (вверху) и №1 и 4 (внизу).

2.2.2 Изучение зависимости «проскока стронция» в разных типах генераторных колонок

Все четыре приведенные в табл. 2.2.1 колонки изготавливали и тестировали по стандартной запатентованной разработанной в ИЯИ РАН методике. Начальная активность стронция-82 во всех колонках составляла $\sim 0,125$ мКи. Режим элюирования – постоянный со скоростью 5 мл/мин. Определение содержания изотопов стронция-82 и стронция-85 в элюате проводили после прохождения через колонку 1 л элюента (0,9% NaCl; pH 5,4). Для этого получали пробу элюата объемом 30 мл (скорость элюирования 48 мл/мин). По соотношению активности пробы на момент окончания элюирования к активности пробы через час после окончания элюирования («проскок стронция») с учетом активности стронция-82 и стронция-85 в колонке на момент проведения измерений.

Цель эксперимента состояла в определении объема элюата, когда проскок стронциев в нем достигает уровня, при котором необходимо усиливать контроль качества элюата («Alert Limit»), а также в определении объема элюата, когда величина проскока стронциев достигает максимального допустимого значения и когда необходимо прекращать эксплуатацию генератора («Expiration Limit»).

На рис. 2.2.3 показана зависимость «проскока» стронция-82 для колонок с различным объемом. Кроме того рисунок позволяет определить объем элюата, при котором достигается «Alert Limit» и «Expiration Limit». Видно, что для всех использованных колонок характерен очень небольшой интервал между Alert Limit и Expiration Limit и он тем меньше, чем меньше объем колонки.

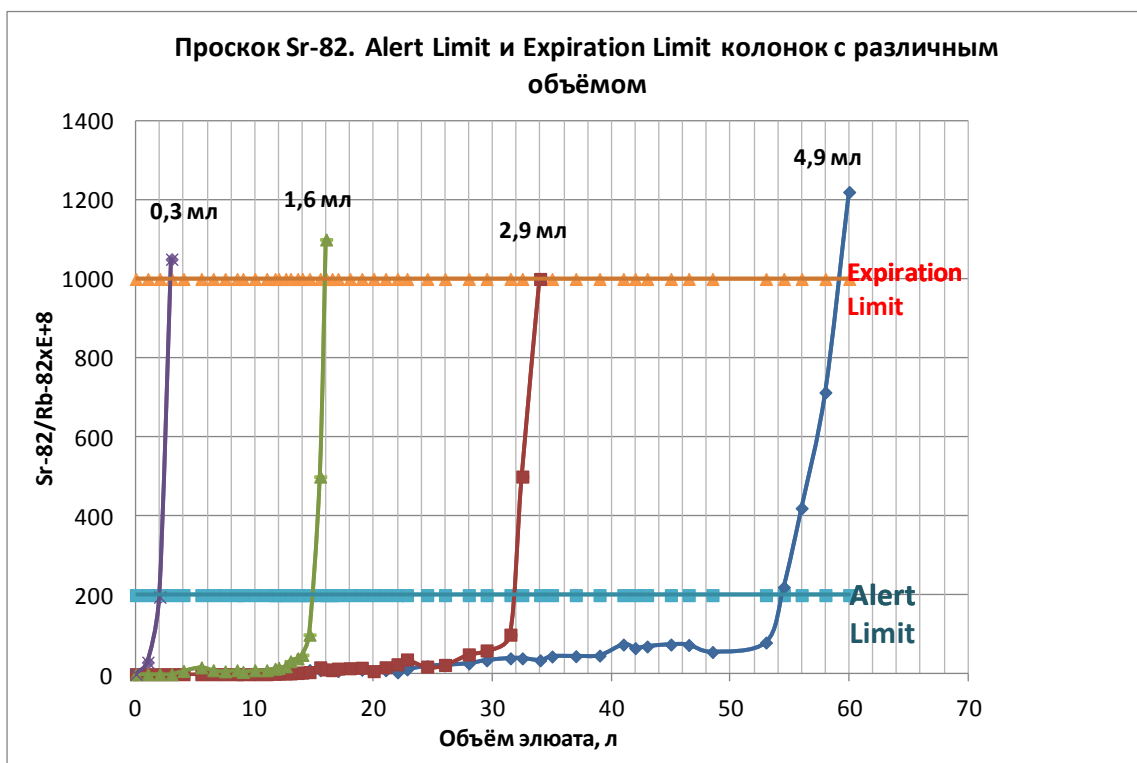


Рисунок 2.2.3 «Проскок» стронция-82 при длительном элюировании в генераторных колонках с различным внутренним объемом в зависимости от объема пропущенного раствора.

На рис. 2.2.4 представлена зависимость «Alert Limit» и «Expiration Limit» от объема колонки. Видно, что она близка к линейной.

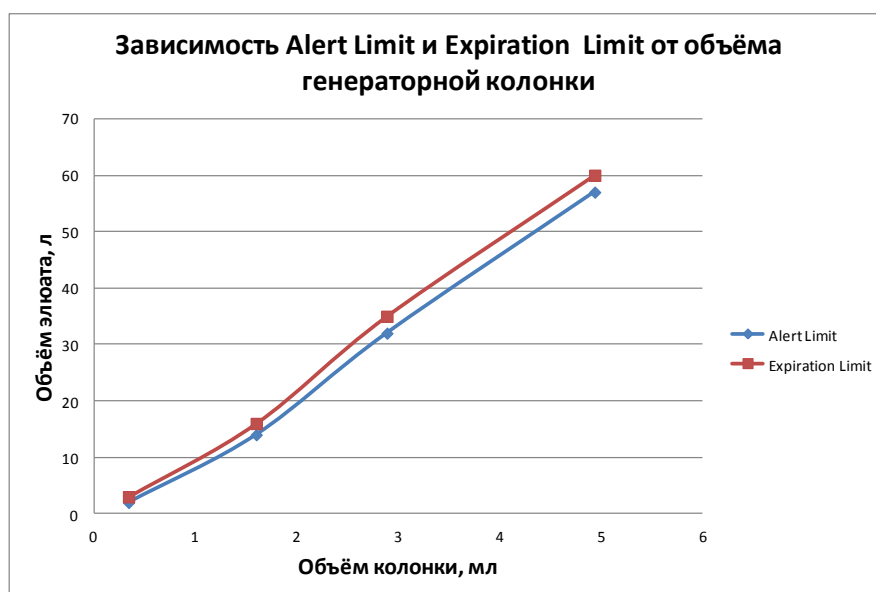


Рисунок 2.2.4 Зависимость «Alert Limit» и «Expiration Limit» от объема колонки

Показано, что рабочий объем генератора определяется объемом генераторной колонки (а значит массой размещенного в ней сорбента), а не ее длиной. Особенно важно то, что обе использовавшиеся в настоящей работе новые колонки с большим объемом (№№1 и 4) могут размещаться в разработанных в ИЯИ РАН и уже используемых защитных контейнерах (на рис. 2.2.5 показан вид сверху новой генераторной колонки (№1) в защитном свинцовом контейнере).



Рисунок 2.2.5 Защитный свинцовый контейнер (ГР-02) с помещенной в него увеличенной колонкой №1 (вид сверху).

Габариты стандартных фитингов для изготовления новых колонок с большим объемом сорбента, которые могут размещаться в уже существующих защитных контейнерах, позволяют изготавливать колонки с максимальным объемом $\sim 6 \text{ см}^3$. Expiration Limit такой колонки может составить ~ 70 л.

Таблица 2.2.2 Сравнение характеристик «старой» и «новой» генераторных колонок

Характеристика	Генераторная колонка		Примечание
	«Старая» №3	«Новая» №1	
Генераторная колонка			
Внешний диаметр трубки генераторной колонки, см	0,95	1,27	
Внутренний диаметр трубки генераторной колонки, см	0,87	1,17	
Площадь сечения трубки генераторной колонки, см ²	0,59	1,07	
Внутренний объём трубки генераторной колонки, см ³	1,60	2,90	
Масса сорбента, г	4,8	8,4	
Жидкостная генераторная система (генераторная колонка с подводящим элюент и отводящим элюат пластиковым удлинителем)			
«Мёртвый» объём*, см ³	~1,5	~2,3	Длина пластикового удлинителя 70 см, внутренний диаметр 0,1 см (0,55 см ³)
* - «Мёртвый» объём = объём генераторной колонки·0,6 + внутренний объём пластикового удлинителя между выходом из генератора и пациентом ~60% объёма колонки занято жидкостью (изотонический раствор)			
Гидродинамическое сопротивление*			
Обратное давление, кПа	~0,2	~0,15	Скорость элюирования 10 мл/мин
Обратное давление, кПа	~0,4	~0,3	Скорость элюирования 20 мл/мин

Обратное давление, кПа	~0,6	~0,8	Скорость элюирования 40 мл/мин
Обратное давление, кПа	~1,5	~1,0	Скорость элюирования 60 мл/мин
Обратное давление, кПа	~2,8	~1,7	Скорость элюирования 90 мл/мин
Обратное давление, кПа	~3,7	~2,5	Скорость элюирования 120 мл/мин
* - Измерение проводили без стерилизующих фильтров; гидродинамическое сопротивление характеризуется величиной обратного давления; Гидродинамическое сопротивление «новой» колонки ниже на ~35% гидродинамического сопротивления «старой» колонки при скорости элюирования от 10 до 120 мл/мин			
Максимальный объем физиологического раствора, до появления «проскока» изотопов стронция			
Максимальный объем раствора до "Alert Limit», л	15	32	
Максимальный объем раствора до «Expiration Limit», л	16	34	
Величина суммарного рабочего объема генератора пропорциональна объему сорбента в генераторной колонке (установлено для интервала массы сорбента 1-15 г)			

2.2.3 Изучение процессов, происходящих при подготовке гидратированного диоксида олова(IV)

Использование с генератором общепринятого в медицине изотонического физиологического раствора (0,1% NaCl), содержащего только катионы H^+ и Na^+ безвредно для пациента, но и позволяет получать в генераторе рубидия-82 элюат с pH 6.0-7.5, при этом разделение Rb^+ и Sr^{2+} происходит наиболее эффективно.

Увеличение рабочей ёмкости генератора рубидия-82 может быть достигнуто за счет изменения методики приготовления сорбента на основе гидратированного диоксида олова IV (ГДО). Для этого были проведены предварительные эксперименты по изучению влияния различных однозарядных катионов на сорбент генератора рубидия-82. Было показано, что взаимодействие находящихся в элюенте протонов с сорбентом приводит к образованию элюата с более высоким по сравнению с элюентом pH. Показано, что катионы металлов первой группы снижают pH элюата по сравнению с pH элюента.

В настоящее время в литературе не существует детального объяснения механизма процессов, происходящих при приготовлении сорбента для генератора рубидия-82, а также механизма образования элюата, исследование, результаты которого позволят не только изучить основные процессы при подготовке сорбента, но и значительно увеличить максимальный объем раствора до «проскока». Требуются дальнейшие исследования особенностей взаимодействия сорбента в генераторе рубидия-82 с однозарядными катионами (протон и металлы первой группы)

В результате работы, продемонстрирована возможности генератора рубидия-82 с увеличенной максимальным объемом раствора до за счёт изменения конструкции генераторной колонки, и имеется дальнейшая перспектива улучшения генератора.

2.3 Разработка и совершенствование методов получения и применения

альфа-излучающих радионуклидов для терапии онкологических заболеваний

В рамках договора, заключенного между ИЯИ РАН и кафедрой радиохимии МГУ им. Ломоносова (№ 1-2013 от 01.02.2013), были проведены совместные работы по дальнейшему развитию и совершенствованию методов получения альфа-излучающих радионуклидов из тория, облученного протонами, и их дальнейшего применения в ядерной медицине.

2.3.1 Изучение радиационной устойчивости экстракционно-хроматографических сорбентов

Общая активность продуктов облучения мишени массой 60-80 г составляет сотни Ки, поэтому необходима оценка влияния дозовой нагрузки на сорбенты при проведении разделения. При этом основной вклад в дозовую нагрузку вносят α -эмиттеры по причине высокой ЛПЭ и низкого пробега. Так, согласно расчетам, вклад в дозовую нагрузку сорбента в колонке DGA Resin только от 1 Ки ^{225}Ac и его образующихся дочерних продуктов составляет десятки кГр и зависит от времени проведения разделения.

При облучении экстракционно-хроматографических материалов в широком диапазоне доз, как правило, не происходит снижения коэффициентов удерживания ионов.

Это перестает быть справедливым в случае образования водорастворимых продуктов радиолиза, образующих комплексы с рассматриваемыми ионами.

Проводилось облучение γ -излучением сорбентов DGA Resin и Sr Resin в условиях близких тем, в которых проводится разделение. Для этого сорбенты помещались в растворы кислот соответствующей концентрации (6 М HNO_3 и 3 М HClO_4 соответственно). Для DGA Resin измерялся $k' \text{ Am(III) } (^{241}\text{Am})$, который при сорбции из 6 М HNO_3 составил $5 \cdot 10^3$, а для Sr Resin $k' \text{ Sr(II) } (^{85}\text{Sr})$ из 3 М HClO_4 – 250 ± 10 . Установлено, что при поглощенной дозе до 298 кГр коэффициенты удерживания указанных радионуклидов не изменяются.

В отличие от коэффициентов разделения ёмкость сорбентов снижается даже для сравнительно небольших доз. Так, в настоящей работе установлено, что при поглощенной дозе равной 298 кГр сорбционная ёмкость Sr Resin по отношению к Sr снижается на 35%. Для необлученного сорбента ёмкость составляет $30,3 \pm 0,6$ мг/г сорбента, после облучения – $19,8 \pm 1,0$ мг/г (рис. 2.3.6). При этом деструкция сорбента аппроксимируется линейным уравнением, пересекающим ось абсцисс при поглощенной дозе 885 кГр. Пример первичных экспериментальных данных для точки $D = 44$ кГр приведен в табл. 2.3.3.

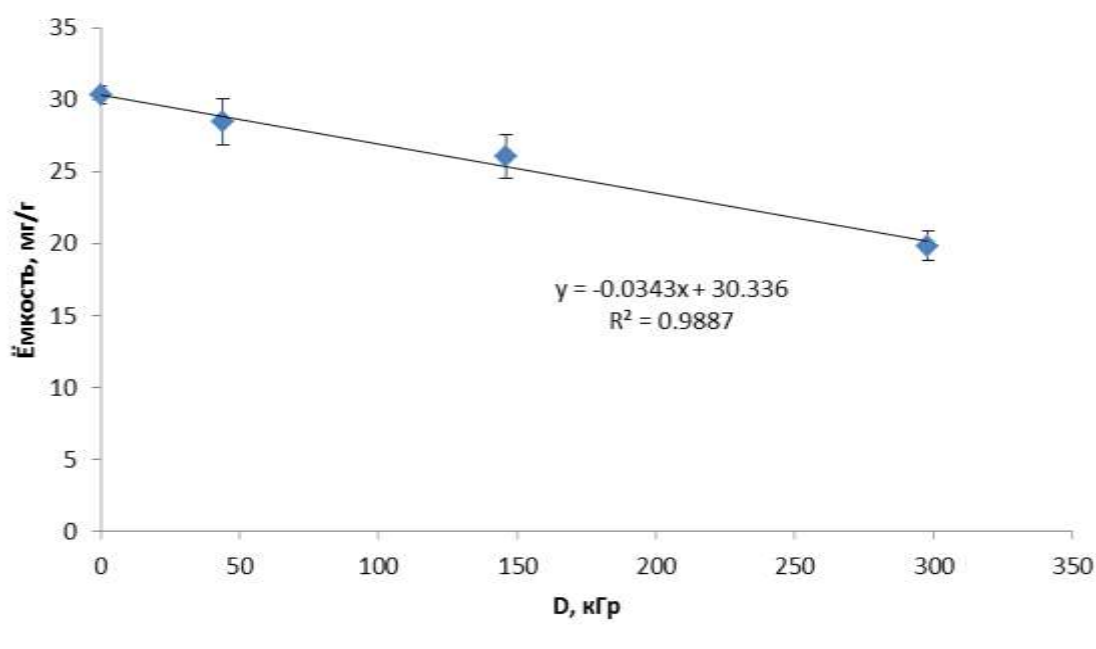


Рисунок 2.3.6 Изменение сорбционной ёмкости сорбента на основе производного 18-краун-6 эфира (Sr Resin) по отношению к Sr^{2+} из 3 М HClO_4 в зависимости от поглощенной дозы.

Таблица 2.3.3 Первичные экспериментальные данные для точки D = 44 кГр.

44 кГр			3 М HClO ₄			
V (p-ра Sr)	m (Sr), мг	c (Sr), г/л	№	I, имп/с	m, г	ёмкость мг/г
0,4	3	1,50	1	1,226054	0,0497	27,59
0,4	3	1,50	2	1,115473	0,0499	30,42
0,4	3	1,50	3	1,121238	0,0498	30,33
0,4	3	1,50	4	1,180839	0,0499	28,68
0,4	3	1,50	5	1,256437	0,05	26,62
0,4	3	1,50	6	1,23127	0,0502	27,18
			blank 1	2,258193	среднее	28,5
					погрешность	1,6

В случае сорбента DGA Resin (рис. 2.3.7) обнаружено снижение ёмкости на 37% (с $9,7 \pm 0,5$ мг/г сорбента до $6,1 \pm 0,5$ мг/г).

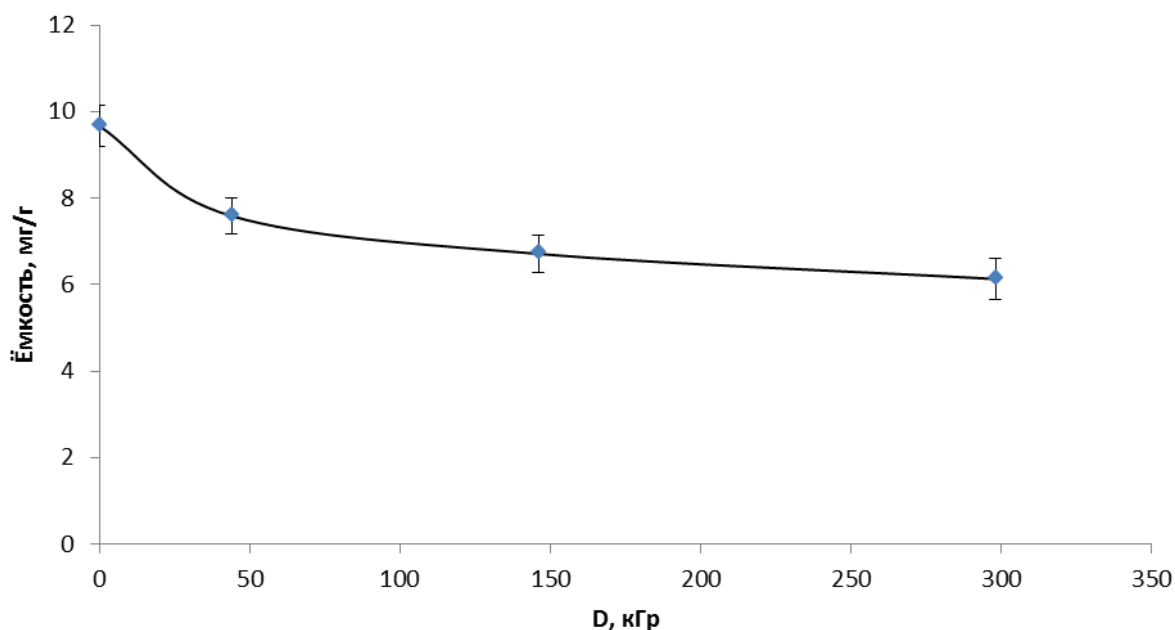


Рисунок 2.3.7 Изменение сорбционной ёмкости сорбента на основе производного дигликольамида (DGA Resin) по отношению к Sr^{2+} из 2 М HNO_3 в зависимости от поглощенной дозы.

Поскольку на основе предложенной ранее методики одновременного выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученных протонами ториевых мишеней предполагается создание соответствующей технологии, изучение радиационной устойчивости используемых для разделения продуктов облучения экстракционно-хроматографических материалов является актуальным и будет продолжено.

2.3.2 Получение частиц гидроксиапатита, меченного Ra-223, для терапии онкологических заболеваний

Для получения частиц гидроксиапатита (ГАП), меченых Ra-223, исследовали два принципиальных подхода: сорбция Ra-223 на готовых формах гидроксиапатита с различной морфологией и введение Ra-223 во время синтеза гидроксиапатита.

Морфологию синтезированных по известной методике нанокристаллитов ГАП изучали с помощью трансмиссионной электронной микроскопии (ТЭМ) (рис. 2.3.8). Установлено, что частицы представляют собой агрегированные пластинки с шириной до 100 нм, длиной до 500 нм и толщиной не более 3 нм. Удельная площадь поверхности нанокристаллитов, измеренная в методом ртутной порометрии, составила 170 м²/г.

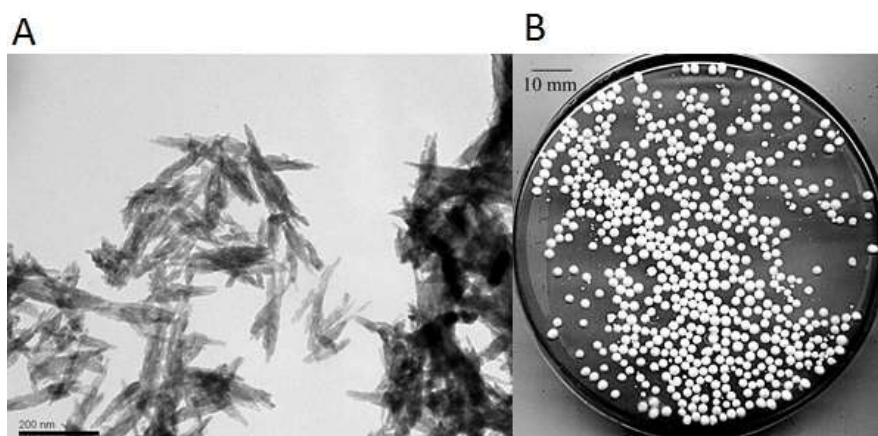


Рисунок 2.3.8 Исследуемые морфологические формы ГАП: А – нанокристаллиты (изображение ТЭМ); В – частицы ГАП с диаметром 350 ± 20 мкм.

Синтезированы и охарактеризованы сферические частицы ГАП с диаметром 350 ± 20 мкм и удельной площадью поверхности 72 м²/г. После отжига при 900-1200 °С порозность снижается с 60 до 15%, а удельная площадь поверхности – до 45 м²/г.

Установлено влияние pH раствора, в котором проводилось мечение ГАП Ra-223, на эффективность мечения (рис. 2.3.9). Деструкция ГАП наблюдалась при значении pH ниже 3, в результате чего снижалась степень сорбции Ra-223. В диапазоне значений pH 3-7 степень сорбции составила $80 \pm 6\%$ и не зависела от pH раствора. В данном диапазоне осуществляется два основных механизма сорбции: встраивание радия в кристаллическую решетку ГАП и адсорбция Ra на его поверхности. При $\text{pH} > 7$ существенный вклад начинает вносить обратимая хемосорбция и извлечение радия возрастает. Образующиеся гидроксокомплексы радия, закрепленные на поверхности ГАП, легко разрушаются с повышением кислотности среды.

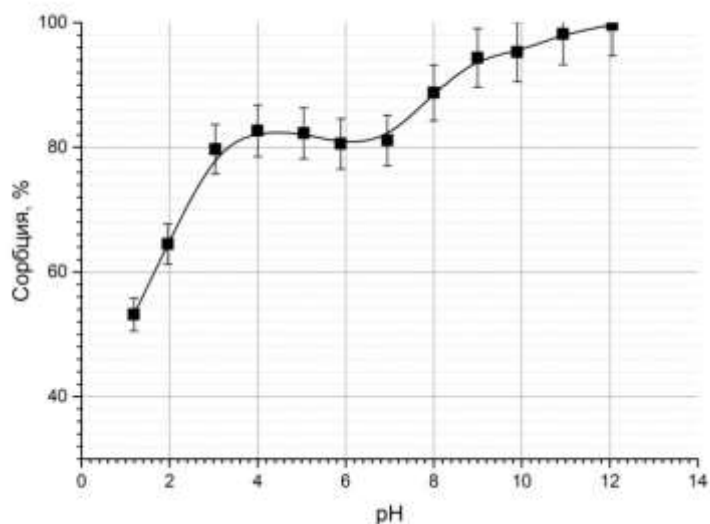


Рисунок 2.3.9 Зависимость сорбции Ra-223 на нанокристаллитах ГАП от pH раствора ($m(\text{ГАП}) = 10 \text{ мг}$, $V(\text{р-ра}) = 1 \text{ мл}$, $T = 22 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$).

Кроме того, с использованием другого радионуклида – Ra-226 получена изотерма адсорбции в данных системах, отвечающая модели Френдлиха (рис. 2.3.10).

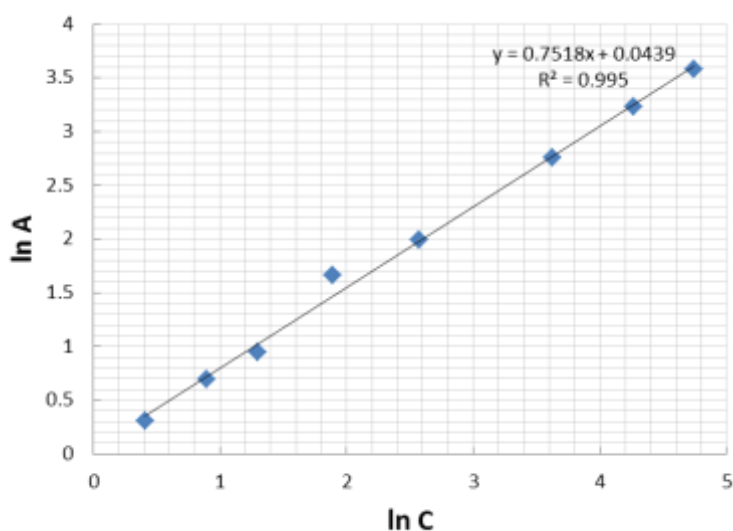


Рисунок 2.3.10 Изотерма сорбции Ra-226 на нанокристаллитах ГАП ($m(\text{ГАП}) = 3 \text{ мг}$, $\text{pH} = 6-7$, $V(\text{р-ра}) = 1 \text{ мл}$, $T = 22 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$), аппроксимация моделью Френдлиха.

Проведены дополнительные эксперименты по десорбции Ra-223 растворами хлорида натрия с различной концентрацией соли (рис. 2.3.11), а также раствором, изотоничным плазме крови (0.9% NaCl) (рис. 2.3.12). Получены кинетические зависимости десорбции радия с нанокристаллитов ГАП, в которых метка Ra-223 вводилась во время синтеза препарата, а полученные кристаллы отжигались при 900°C в течение 3 ч. На рис. 2.3.12 полученные результаты представлены в сравнении с полученными ранее результатами десорбции с других морфологических форм ГАП. Для

изотонического раствора самую высокую десорбцию – до 22% Ra-223 наблюдали для крупных сферических частиц ГАП, на которых радий был сорбирован после их приготовления. Если после сорбции сферические частицы подвергали отжигу при 900 °С, десорбция радия снижалась примерно в 2 раза. Десорбция радия с нанокристаллитов, меченных во время синтеза, не превысила 15%, что существенно выше, чем для нанокристаллитов, на которых радий сорбирован после их приготовления. При этом в результате отжига десорбция снизилась до 5% от сорбированного Ra-223. Исследована последовательная десорбция радия с термообработанных частиц нано-ГАП новыми порциями изотонического раствора, при этом десорбция на третьей стадии оказалась менее 1% Ra-223.

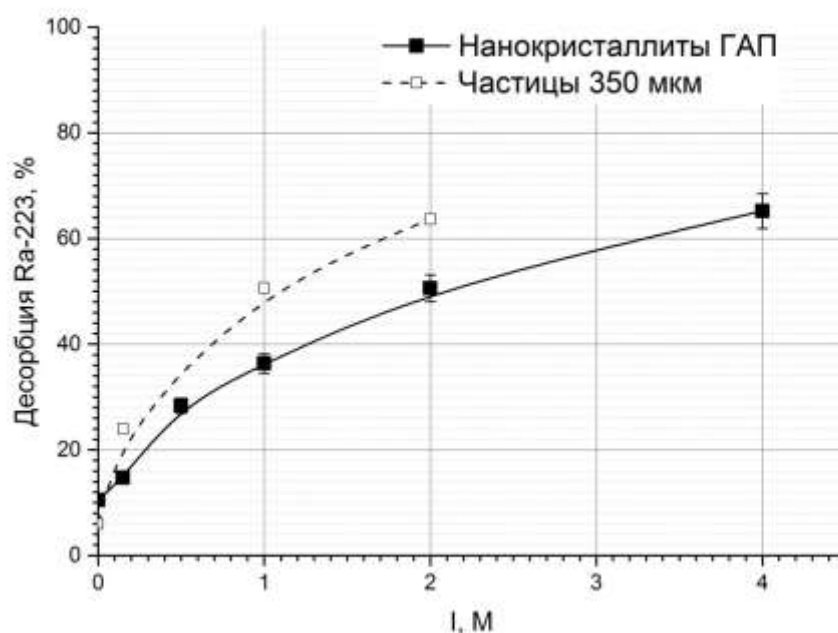


Рисунок 2.3.11 Зависимость десорбции Ra-223 на нанокристаллитах ГАП (закрепленные квадраты) и на сфероиде 350 мкм (открытые квадраты) от ионной силы раствора ($m(\text{ГАП}) = 10 \text{ мг}$, $\text{pH} = 6-7$, $V(\text{р-ра}) = 1 \text{ мл}$, $T = 22 \pm 2 \text{ } ^\circ\text{C}$).

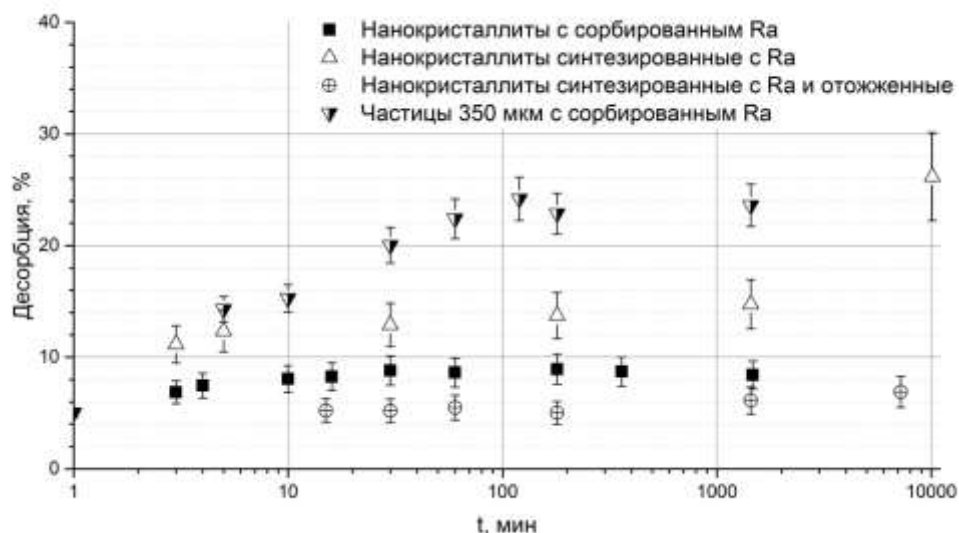


Рисунок 2.3.12 Кинетика десорбции Ra-223 с частиц ГАП различной морфологии 0,9% раствором NaCl ($m(\text{ГАП}) = 10 \text{ мг}$, $\text{pH} = 6-7$, $V(\text{p-ра}) = 1 \text{ мл}$, $T = 22 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$).

Для получения изображений с помощью авторадииографии, проводили сорбцию радия на крупных сфероидах ГАП. Частицы разрезали скальпелем, полусферы поместили на пластинку из полиаллилдигликолькарбоната. После травления с помощью микроскопа подсчитывалось количество полученных треков в концентрических кругах в зависимости от расстояния от центра сферы. Для каждого времени сорбции усреднялась доля треков для 4-5 полусфер. Авторадииографические исследования показали, что на начальном этапе радий скапливается на поверхности гранул и в приповерхностном слое (рис. 2.3.13). Причем этот процесс происходит почти до 70-80%-ой степени сорбции радия, и только потом радионуклид начинает проникать дальше вглубь гранулы сорбента (рис. 2.3.14).

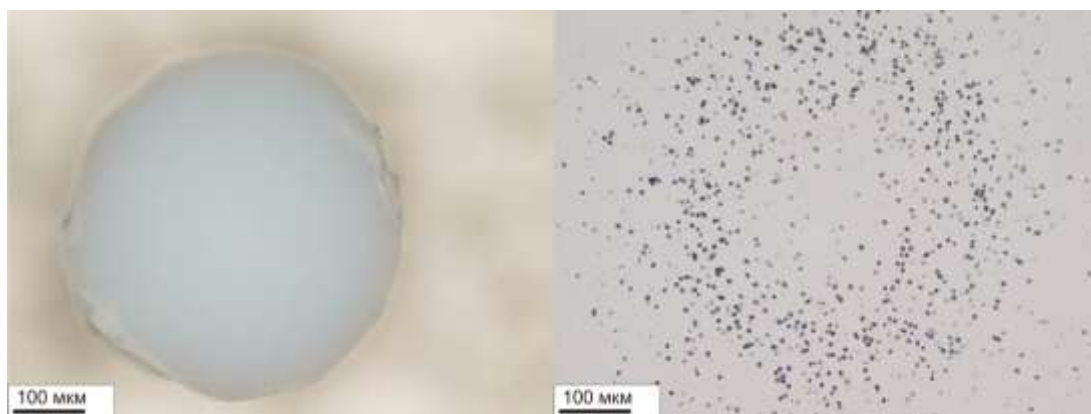


Рисунок 2.3.13 Авторадииография частицы ГАП ($d = 450-550 \text{ мкм}$) с сорбированным Ra-223.

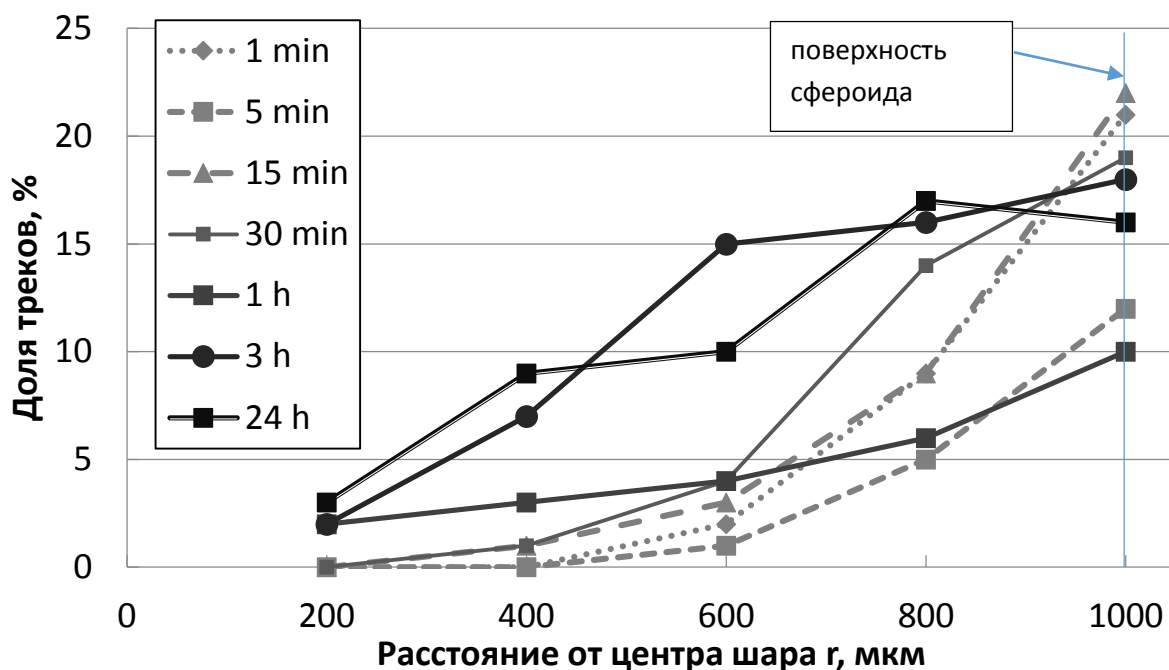


Рисунок 2.3.14 Доля альфа-треков частиц ГАП ($r = 450-550$ мкм) с сорбированным Ra-223 в зависимости от времени сорбции и расстояния от центра сфероиды.

Полученные данные позволяют оценить коэффициент диффузии радия в пористом сорбенте и создать математическую модель терапевтического действия радиофармпрепарата на основе таких частиц.

2.3.3 Изучение экстракционно-хроматографического поведения ^{230}Pa и стабильности работы модельного U/Th генератора

Наряду с ^{225}Ac и ^{223}Ra при облучении природного тория протонами образуется ^{230}Pa , который также является перспективным радионуклидом для современной ядерной медицины, так как в цепочке распада образуются ^{230}U и ^{226}Th , являющиеся α -эмиттерами. Для оптимизации условий выделения чистой фракции ^{230}Pa были определены его коэффициенты распределения на экстракционно-хроматографических сорбентах фирмы Triskem (DGA Resin, TRU Resin, Octanol Resin, TEVA, UTEVA) в диапазоне концентраций азотных и солянокислых растворов от 0,01 М до 9 М (*рис. 15-17*). Полученные данные не противоречат имеющимся в литературе.

Наиболее высокие коэффициенты распределения наблюдаются в диапазоне концентраций 3 – 9 М HNO_3 и HCl . Протактиний образует устойчивые анионные комплексы типа $\text{Pa}(\text{OH})_2(\text{NO}_3)_4^-$ при концентрации азотной кислоты выше 2 М HNO_3 и оксо-хлоридные комплексы PaOCl_4^- , PaOCl_5^{2-} и PaOCl_6^{3-} при концентрации соляной кислоты выше 3 М.

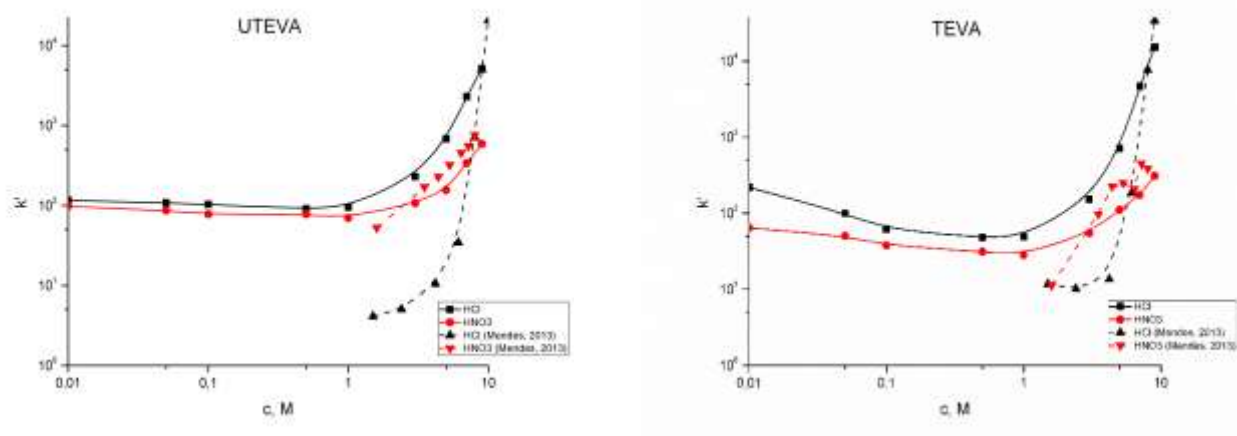


Рисунок 2.3.15 Зависимость коэффициента распределения от концентрации соляной и азотной кислот для сорбентов UTEVA, TEVA Resin.

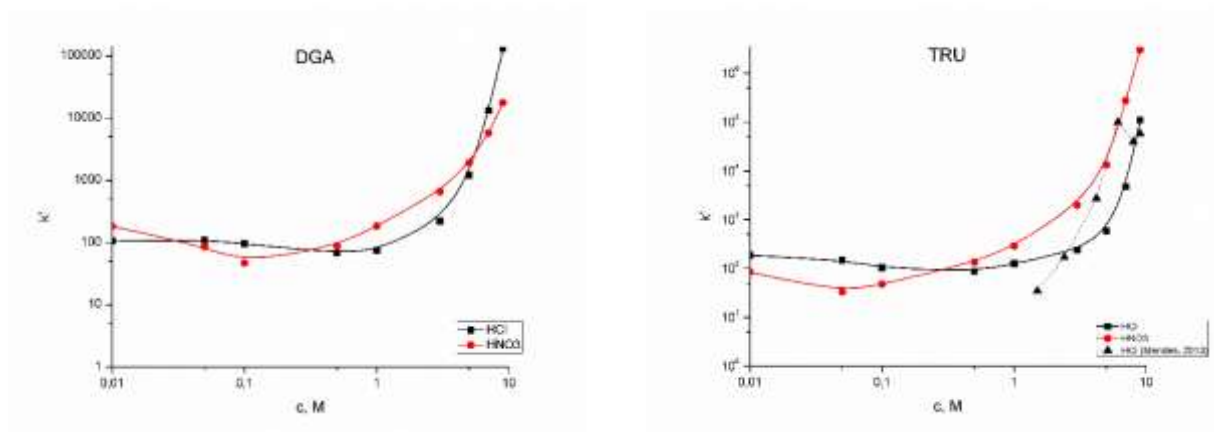


Рисунок 2.3.16 Зависимость коэффициента распределения от концентрации соляной и азотной кислот для сорбентов DGA, TRU Resin.

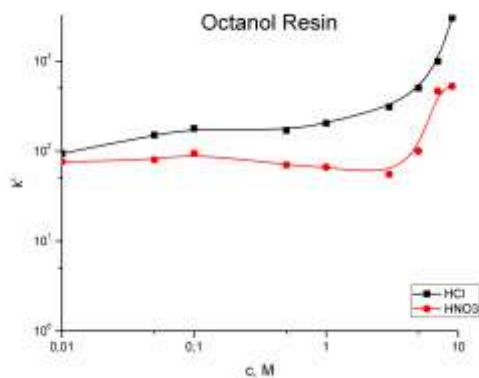


Рисунок 2.3.17 Зависимость коэффициента распределения от концентрации соляной и азотной кислот для Octanol Resin.

Невысокие коэффициенты распределения соответствуют разбавленным растворам азотной и соляной кислот, поскольку протактиний образует положительно заряженные комплексы (например, $\text{Pa}(\text{OH})_3\text{NO}_3^+$, $\text{Pa}(\text{OH})_2\text{NO}_3^{2+}$) при 1 - 2 М HNO_3 и концентрации $\text{HCl} \leq 3 - 4$ М, которые при повышении концентрации переходят в нейтральные или анионные комплексы.

Полученные данные нужны для разработки методики выделения ^{230}Pa , а также для отделения от дочернего ^{230}U . Кроме того было обнаружено, что экстракционно-хроматографические смолы могут быть использованы в $^{230}\text{U}/^{226}\text{Th}$ генераторе.

Для изучения стабильности работы модельного U/Th генератора тестировали смолу TEVA Resin на основе тетрааммониевой соли (размер частиц 100-150 мкм). Вместо ^{230}U использовали смесь изотопов $^{232,233,238}\text{U}$, вместо ^{226}Th – ^{227}Th . Навеску соли уранил ацетата массой 0,048 г растворяли в 2 мл 7 М HCl , концентрация U в растворе составляла 0,056 М. Раствор пропускали через колонку ($h=5,5$ см, $r=0,4$ см, $V=2,7$ см³), заполненную TEVA. При элюировании раствором 7 М HCl уран остается на колонке, а торий вымывается. Проскок урана контролировали с помощью жидкостного сцинтилляционного спектрометра. После пропускания 200 колоночных объемов элюата (около 500 мл) проскока урана не наблюдали. При этом ^{227}Th вымывается небольшим объемом элюата (рис. 2.3.18).

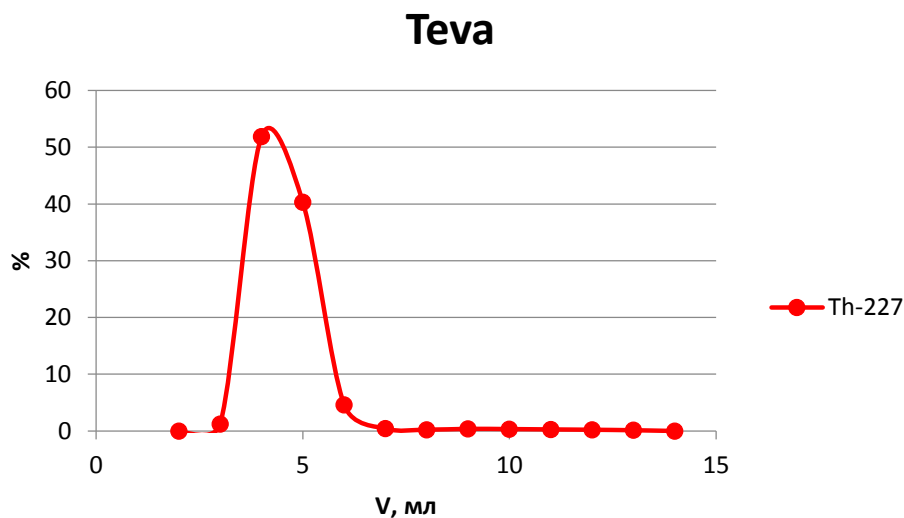


Рисунок 2.3.18 Кривая вымывания ^{227}Th из модельного U/Th генератора.

Эффективность элюирования ^{227}Th , которую контролировали гамма-спектрометрически, составляла более 98%. Тестирование модельного U/Th генератора будет продолжено до появления проскока урана в элюат.

2.4 Измерение сечений образования продуктов деления

тория при облучении протонами средних энергий

Изучение выхода фрагментов, образовавшихся в результате распада возбужденных тяжелых делящихся ядер, представляет значительный интерес как с точки зрения ядерной физики, так и радиохимии, и позволяет лучше понять механизмы образования изотопов.

Были получены экспериментальные сечения продуктов деления тория при облучении протонами с энергиями 141-21 МэВ, определенные по гамма-измерениям образцов с выдержкой около года после облучения. Этот диапазон энергий протонов наиболее информативен для изучения конкуренции каналов симметричного и асимметричного деления тория и других тяжелых ядер. Результаты расчета сечений в сборке фольг, облученной протонами с начальной энергией 158,5 МэВ, представлены в табл. 2.4, результаты для протонов с начальной энергией 100,1 МэВ – в табл. 2.5.

Таблица 2.4 Экспериментальные сечения образования радионуклидов в сборке фольг, облученной протонами с начальной энергией 158,5 МэВ (время выдержки около 1 года).

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Y-88	Zr-95	Ru-103	Ru-106
141,3 ± 1,0	0,19 ± 0,03	36,0 ± 5,1	50,5 ± 7,2	45,8 ± 6,5
128,6 ± 1,5	0,16 ± 0,03	37,7 ± 5,3	50,9 ± 7,2	47,7 ± 6,8
123,3 ± 1,8	0,15 ± 0,03	38,0 ± 5,4	52,4 ± 7,5	48,2 ± 6,8
117,9 ± 2,1	0,13 ± 0,02	36,3 ± 5,2	49,7 ± 7,1	46,4 ± 6,6
112,2 ± 2,4	0,14 ± 0,02	38,5 ± 5,5	51,8 ± 7,4	48,5 ± 6,9
106,3 ± 2,8	0,17 ± 0,03	39,5 ± 5,6	53,6 ± 7,7	49,8 ± 7,1
100,2 ± 3,3	0,13 ± 0,02	38,9 ± 5,6	52,1 ± 7,5	48,9 ± 7,0
93,8 ± 3,8	0,12 ± 0,02	39,2 ± 5,7	51,5 ± 7,5	49,3 ± 7,1
87,1 ± 4,5	0,13 ± 0,02	40,4 ± 5,9	53,4 ± 7,8	51,8 ± 7,6
79,9 ± 5,3	0,13 ± 0,03	43,4 ± 6,5	55,6 ± 8,4	53,4 ± 8,0
72,2 ± 6,4	0,14 ± 0,03	45,1 ± 7,0	55,5 ± 8,6	53,3 ± 8,2
63,8 ± 7,8	0,15 ± 0,03	47,4 ± 8,0	58,5 ± 9,7	57,5 ± 9,5
54,4 ± 9,7	0,14 ± 0,03	51,0 ± 10,0	58,4 ± 11,1	58,8 ± 11,1

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Ag-110m	Sn-123	Sb-124	Sb-125
141,3 ± 1,0	1,74 ± 0,25	14,6 ± 3,2	13,3 ± 1,9	24,1 ± 3,4
128,6 ± 1,5	1,49 ± 0,21	16,2 ± 3,3	14,0 ± 2,0	26,3 ± 3,7
123,3 ± 1,8	1,38 ± 0,20	16,2 ± 2,5	14,1 ± 2,0	25,8 ± 3,7
117,9 ± 2,1	1,20 ± 0,17	16,4 ± 3,3	13,6 ± 1,9	25,8 ± 3,7
112,2 ± 2,4	1,09 ± 0,16	17,2 ± 3,0	14,5 ± 2,1	27,6 ± 3,9
106,3 ± 2,8	1,03 ± 0,15	17,5 ± 3,3	14,9 ± 2,1	28,4 ± 4,1
100,2 ± 3,3	0,92 ± 0,13	16,9 ± 3,2	14,8 ± 2,1	28,5 ± 4,1
93,8 ± 3,8	0,78 ± 0,11	17,6 ± 3,2	14,8 ± 2,1	29,1 ± 4,2
87,1 ± 4,5	0,67 ± 0,10	19,6 ± 3,3	15,4 ± 2,3	31,2 ± 4,6
79,9 ± 5,3	0,56 ± 0,09	21,4 ± 4,1	16,3 ± 2,4	33,4 ± 5,0
72,2 ± 6,4	0,46 ± 0,07	24,5 ± 4,4	16,7 ± 2,6	35,2 ± 5,4
63,8 ± 7,8	0,32 ± 0,06	23,9 ± 4,4	16,7 ± 2,8	38,4 ± 6,4
54,4 ± 9,7	0,22 ± 0,04	26,0 ± 5,3	16,6 ± 3,1	42,6 ± 8,1

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Te-121m	Te-123m	Te-127m	Cs-134
141,3 ± 1,0	0,35 ± 0,05	2,41 ± 0,35	10,63 ± 3,65	5,74 ± 0,81
128,6 ± 1,5	0,25 ± 0,04	2,16 ± 0,31	10,45 ± 3,27	6,08 ± 0,86
123,3 ± 1,8	0,21 ± 0,04	2,01 ± 0,29	10,04 ± 1,96	6,10 ± 0,87
117,9 ± 2,1	0,18 ± 0,03	1,80 ± 0,26	10,63 ± 2,08	5,98 ± 0,85
112,2 ± 2,4	0,15 ± 0,02	1,72 ± 0,25	11,10 ± 2,84	6,38 ± 0,91
106,3 ± 2,8	0,14 ± 0,03	1,59 ± 0,23	12,02 ± 3,53	6,51 ± 0,93
100,2 ± 3,3	0,11 ± 0,02	1,47 ± 0,21	10,73 ± 3,48	6,49 ± 0,93
93,8 ± 3,8	0,08 ± 0,02	1,29 ± 0,19	10,73 ± 2,96	6,63 ± 0,96
87,1 ± 4,5	0,07 ± 0,02	1,10 ± 0,16	12,08 ± 2,69	7,06 ± 1,03
79,9 ± 5,3	0,05 ± 0,01	0,96 ± 0,15	11,40 ± 3,50	7,30 ± 1,09
72,2 ± 6,4	0,05 ± 0,02	0,83 ± 0,14	12,33 ± 3,37	7,51 ± 1,16
63,8 ± 7,8	0,04 ± 0,01	0,55 ± 0,10	12,73 ± 3,09	7,64 ± 1,27
54,4 ± 9,7	0,04 ± 0,02	0,39 ± 0,08	13,28 ± 4,27	7,51 ± 1,42

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Cs-137	Ba-133	Ce-139	Ce-141
141,3 ± 1,0	15,1 ± 2,2	1,31 ± 0,28	1,61 ± 0,23	27,4 ± 5,8
128,6 ± 1,5	16,9 ± 2,4	1,16 ± 0,23	1,35 ± 0,19	21,2 ± 3,7
123,3 ± 1,8	17,0 ± 2,5	1,13 ± 0,26	1,39 ± 0,20	20,9 ± 3,9
117,9 ± 2,1	16,9 ± 2,4	1,06 ± 0,26	1,28 ± 0,19	20,3 ± 3,8
112,2 ± 2,4	18,0 ± 2,6	0,86 ± 0,17	1,28 ± 0,18	27,1 ± 4,6
106,3 ± 2,8	19,2 ± 2,7	0,86 ± 0,19	1,21 ± 0,17	29,2 ± 5,3
100,2 ± 3,3	19,1 ± 2,7	0,75 ± 0,18	1,12 ± 0,16	22,6 ± 4,0
93,8 ± 3,8	19,7 ± 2,8	0,66 ± 0,16	1,02 ± 0,15	25,8 ± 4,4
87,1 ± 4,5	21,3 ± 3,1	0,47 ± 0,14	0,92 ± 0,14	24,5 ± 4,1
79,9 ± 5,3	23,2 ± 3,5	0,43 ± 0,11	0,83 ± 0,13	32,2 ± 6,2
72,2 ± 6,4	25,1 ± 3,9	0,41 ± 0,16	0,76 ± 0,12	34,4 ± 6,3
63,8 ± 7,8	28,5 ± 4,7	0,32 ± 0,15	0,56 ± 0,10	31,8 ± 6,0

$54,4 \pm 9,7$	$33,0 \pm 6,3$	$0,14 \pm 0,07$	$0,44 \pm 0,08$	$32,4 \pm 7,1$
----------------	----------------	-----------------	-----------------	----------------

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)		
	Ce-144	Pm-148m	Eu-154
$141,3 \pm 1,0$	$8,30 \pm 1,18$	$1,96 \pm 0,38$	$0,52 \pm 0,16$
$128,6 \pm 1,5$	$8,92 \pm 1,27$	$1,6 \pm 0,52$	-
$123,3 \pm 1,8$	$9,29 \pm 1,32$	$2,20 \pm 0,54$	-
$117,9 \pm 2,1$	$9,19 \pm 1,31$	$2,15 \pm 0,39$	$0,79 \pm 0,30$
$112,2 \pm 2,4$	$9,79 \pm 1,40$	$1,94 \pm 0,55$	-
$106,3 \pm 2,8$	$10,27 \pm 1,47$	$2,14 \pm 0,59$	$0,25 \pm 0,25$
$100,2 \pm 3,3$	$10,28 \pm 1,48$	$2,02 \pm 0,54$	-
$93,8 \pm 3,8$	$10,57 \pm 1,53$	$2,15 \pm 0,51$	$0,40 \pm 0,17$
$87,1 \pm 4,5$	$11,60 \pm 1,70$	$2,41 \pm 0,56$	$0,38 \pm 0,15$
$79,9 \pm 5,3$	$12,38 \pm 1,85$	$2,64 \pm 0,66$	$0,61 \pm 0,34$
$72,2 \pm 6,4$	$13,50 \pm 2,09$	$3,06 \pm 0,79$	$0,54 \pm 0,14$
$63,8 \pm 7,8$	$14,92 \pm 2,47$	$2,47 \pm 0,73$	$0,59 \pm 0,16$
$54,4 \pm 9,7$	$17,09 \pm 3,24$	$2,47 \pm 0,75$	$0,32 \pm 0,17$

Таблица 2.5 Экспериментальные сечения образования радионуклидов в сборке фольг, облученной протонами с начальной энергией 100,1 МэВ (время выдержки около 1 года).

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Y-88	Y-91	Zr-88	Zr-95
$74,8 \pm 0,9$	$0,15 \pm 0,03$	-	$0,069 \pm 0,029$	$39,8 \pm 5,6$
$66,9 \pm 1,4$	$0,12 \pm 0,03$	$36,1 \pm 12,4$	$0,049 \pm 0,017$	$40,9 \pm 5,8$
$58,0 \pm 2,2$	$0,10 \pm 0,02$	-	$0,054 \pm 0,018$	$42,3 \pm 6,1$
$47,9 \pm 3,5$	$0,15 \pm 0,03$	$36,3 \pm 9,1$	$0,065 \pm 0,015$	$45,3 \pm 6,8$

$35,6 \pm 5,9$	$0,12 \pm 0,03$	$37,3 \pm 12,8$	$0,068 \pm 0,022$	$44,9 \pm 8,3$
$21,0 \pm 8,1$	$0,04 \pm 0,01$	$41,2 \pm 14,7$	-	$45,7 \pm 14,1$

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Ru-103	Ru-106	Ag-110m	Sn-123
$74,8 \pm 0,9$	$49,4 \pm 7,1$	$47,9 \pm 6,8$	$0,20 \pm 0,03$	$22,2 \pm 4,9$
$66,9 \pm 1,4$	$49,2 \pm 7,1$	$47,6 \pm 6,8$	$0,12 \pm 0,02$	$21,0 \pm 3,9$
$58,0 \pm 2,2$	$48,7 \pm 7,0$	$47,8 \pm 6,9$	$0,08 \pm 0,02$	$21,8 \pm 3,6$
$47,9 \pm 3,5$	$46,9 \pm 7,1$	$45,4 \pm 6,8$	$0,12 \pm 0,02$	$21,5 \pm 3,6$
$35,6 \pm 5,9$	$40,5 \pm 7,5$	$37,7 \pm 6,9$	$0,10 \pm 0,02$	$16,7 \pm 3,6$
$21,0 \pm 8,1$	$31,3 \pm 9,7$	$28,6 \pm 8,8$	$0,10 \pm 0,04$	$11,9 \pm 4,3$

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Sb-124	Sb-125	Te-121m	Te-123m
$74,8 \pm 0,9$	$13,8 \pm 2,0$	$33,0 \pm 4,7$	$0,028 \pm 0,008$	$0,49 \pm 0,08$
$66,9 \pm 1,4$	$13,1 \pm 1,9$	$34,5 \pm 4,9$	$0,049 \pm 0,009$	$0,31 \pm 0,06$
$58,0 \pm 2,2$	$11,8 \pm 1,7$	$36,5 \pm 5,3$	$0,021 \pm 0,007$	$0,16 \pm 0,04$
$47,9 \pm 3,5$	$9,4 \pm 1,4$	$37,9 \pm 5,7$	$0,025 \pm 0,006$	$0,12 \pm 0,04$
$35,6 \pm 5,9$	$5,7 \pm 1,0$	$33,9 \pm 6,2$	$0,042 \pm 0,012$	$0,03 \pm 0,01$
$21,0 \pm 8,1$	$2,6 \pm 0,8$	$27,1 \pm 8,3$	-	-

Энергия протонов	Сечение (мб)			
	Te-127m	Cs-134	Cs-137	Ba-133

(МэВ)				
74,8 ± 0,9	11,94 ± 2,16	6,64 ± 0,94	24,7 ± 3,5	0,20 ± 0,09
66,9 ± 1,4	11,45 ± 4,17	6,07 ± 0,86	27,0 ± 3,8	0,04 ± 0,04
58,0 ± 2,2	11,38 ± 2,71	5,30 ± 0,76	29,9 ± 4,3	-
47,9 ± 3,5	12,81 ± 1,61	3,98 ± 0,60	36,2 ± 5,5	-
35,6 ± 5,9	8,73 ± 2,68	2,24 ± 0,41	42,8 ± 7,9	-
21,0 ± 8,1	5,17 ± 1,74	0,98 ± 0,30	46,9 ± 14,5	-

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)			
	Ce-139	Ce-141	Ce-144	Pm-148m
74,8 ± 0,9	0,45 ± 0,08	28,7 ± 5,2	13,18 ± 1,88	2,34 ± 0,42
66,9 ± 1,4	0,31 ± 0,21	31,2 ± 5,6	14,08 ± 2,46	2,49 ± 0,39
58,0 ± 2,2	0,24 ± 0,04	27,6 ± 4,9	14,95 ± 2,15	1,55 ± 0,36
47,9 ± 3,5	0,17 ± 0,03	34,2 ± 5,6	17,45 ± 2,63	2,31 ± 0,38
35,6 ± 5,9	0,11 ± 0,03	39,0 ± 7,8	21,11 ± 3,89	2,46 ± 0,50
21,0 ± 8,1	0,07 ± 0,03	47,5 ± 15,0	25,59 ± 7,90	1,49 ± 0,49

Энергия протонов (МэВ)	Сечение (мб)	
	Eu-154	
74,8 ± 0,9	0,47 ± 0,18	
66,9 ± 1,4	0,38 ± 0,11	
58,0 ± 2,2	0,36 ± 0,22	
47,9 ± 3,5	0,39 ± 0,13	
35,6 ± 5,9	-	
21,0 ± 8,1	0,44 ± 0,15	

На основании расчета, выполненного по модели CEF, было построено массовое распределение продуктов деления тория для энергии протонов 141 МэВ (рис. 2.19) и 100 МэВ (рис. 2.20). На график нанесены экспериментальные сечения кумулятивно образующихся радионуклидов, определенные по гамма-измерениям образцов с выдержкой около года после облучения, а также литературные данные (Y. E. Titarenko et

al. Final Project Technical Report of ISTC 83B-99, International Nuclear Data Committee of the International Atomic Energy Agency Report INDC(CCP)-434, Vienna, February, (2003); J.W. Engle et al. Ac, La, and Ce Radioimpurities in ^{225}Ac Produced in 40-200 MeV Proton Irradiations of Thorium. *Radiochim. Acta*, 102, N 7, 569, (2014); J.R. Griswold et al. Large Scale Accelerator Production of ^{225}Ac : Effective Cross Sections for 78-192 MeV Protons Incident on ^{232}Th Targets. *Appl. Radiat. and Isot.*, (2016), <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.09.026>).

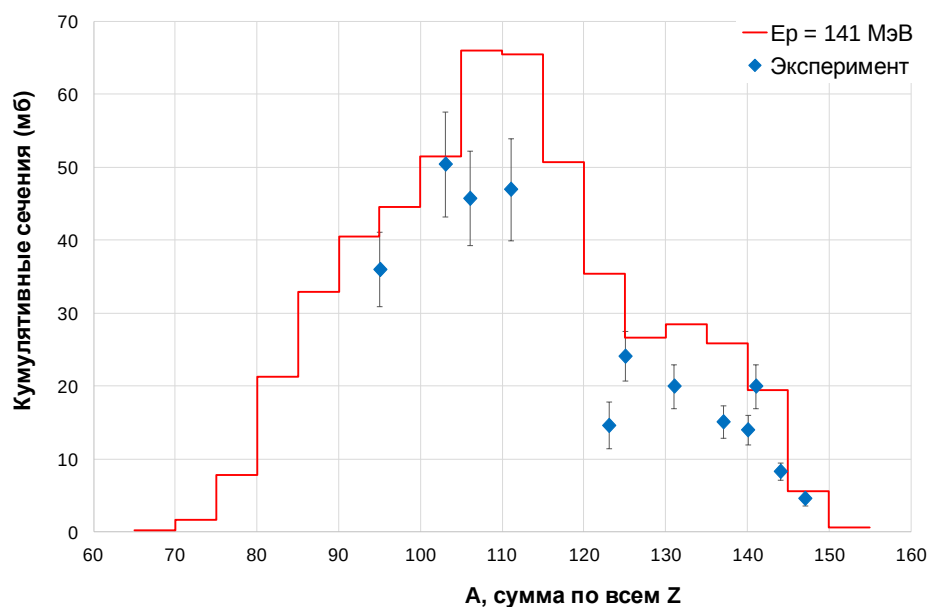


Рисунок 2.19 Массовое распределение продуктов деления тория при облучении протонами с энергией 141 МэВ.

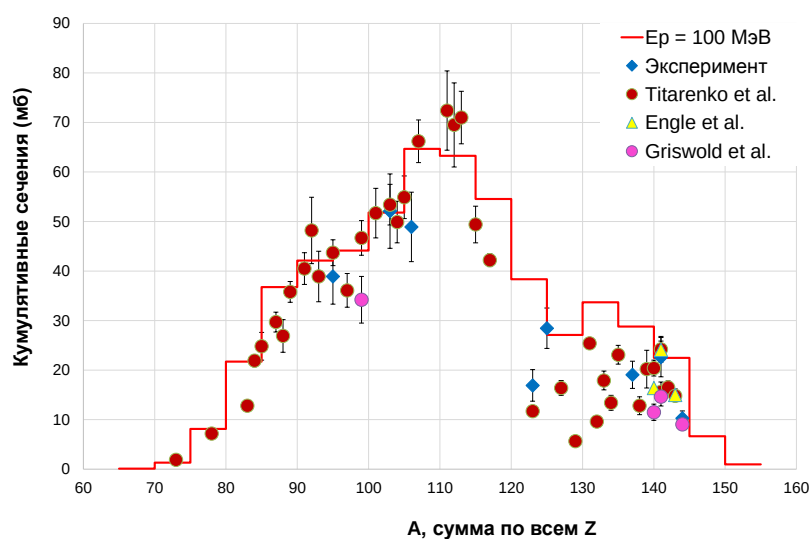


Рисунок 2.20 Массовое распределение продуктов деления тория при облучении протонами с энергией 100 МэВ.

Предварительное сравнение показывает, что расчетное массовое распределение удовлетворительно согласуется с опытными данными. Видно некоторое завышение правого асимметричного пика, которое, по всей видимости, связано с тем, что для этой области в экспериментальное кумулятивное сечение дают вклад не все ядра с заданным A . Будет продолжена идентификация радионуклидов в гамма-спектрах, полученных для разных времен выдержки образцов и для разных энергий протонов, чтобы получить более полные экспериментальные массовые распределения продуктов деления тория и проследить эволюцию симметричного и асимметричного деления в исследуемом диапазоне энергий протонов.

2.5 Изучение образования изотопов в основном и метастабильном состоянии в реакциях с протонами

Получены экспериментальные сечения радиоизотопов теллура, образующихся в основном и метастабильном состоянии (^{119g}Te , ^{119m}Te , ^{121g}Te , ^{121m}Te) при облучении сурьмы протонами средних энергий.

Были проведены облучения фольг из природной сурьмы с начальными энергиями протонов 158.8 МэВ, 94.4 МэВ, 72.7 МэВ, 37.8 МэВ; фольг из Sb-123 с начальными энергиями протонов 113.3 МэВ, 72.7 МэВ; фольг из Sb-121 с начальной энергией протонов 37.8 МэВ.

На рис. 2.21-25 приведены экспериментальные сечения радиоизотопов теллура в сравнении с сечениями, рассчитанными по теоретическим моделям, а также с имеющимися литературными данными (S.Takacs, M.P.Takacs, A.Hermanne, F.Tarkanyi, R.Adam-Rebeles. Cross sections of proton induced reactions on natSb. Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B, v.297, p.44 (2013); M.C.Lagunas-Solar, O.F.Carvacho, S-T.Yang, Y.Yano. Cyclotron production of PET radionuclides: ^{118}Sb (3.5 min; beta+ 75%; EC 25%) from high-energy protons on natural Sb targets. Applied Radiation and Isotopes, v.41, p.521, (1990); V.G. Batii, E.A. Skakun, O.A. Rastrepin, Ju.N. Rakivnenko. Excitation functions of $\text{Sb-121}(p,n)\text{Te-121-m,g}$ and $\text{Sb-123}(p,n)\text{Te-123-m}$ reactions. Izv. Rossiiskoi Akademii Nauk, Ser.Fiz., v.48, p.194, (1984); B.P.Singh, M.K.Sharma, M.M.Musthafa, H.D.Bhardwaj, R.Prasad. A study of pre-equilibrium emission in some proton- and alpha-induced reactions. Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.A, v.562, p.717, (2006)).

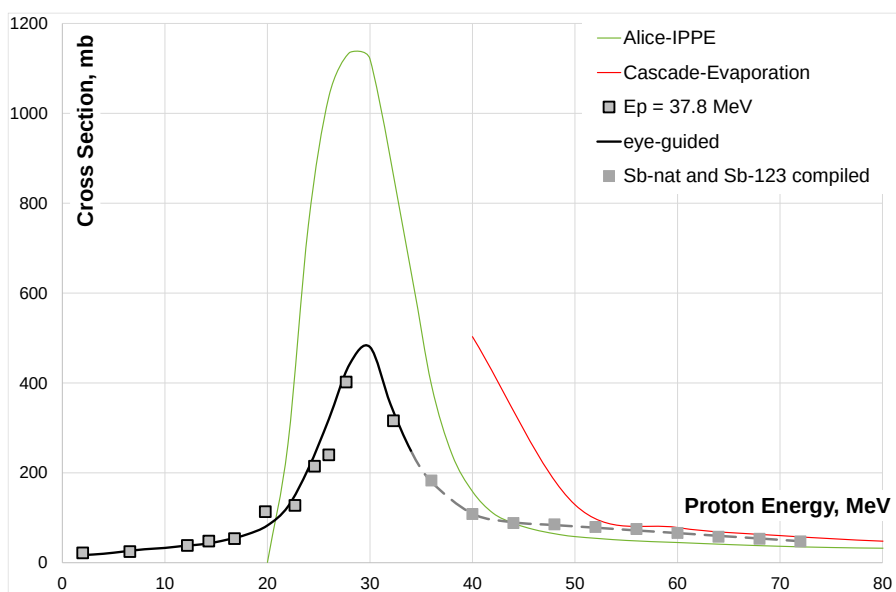
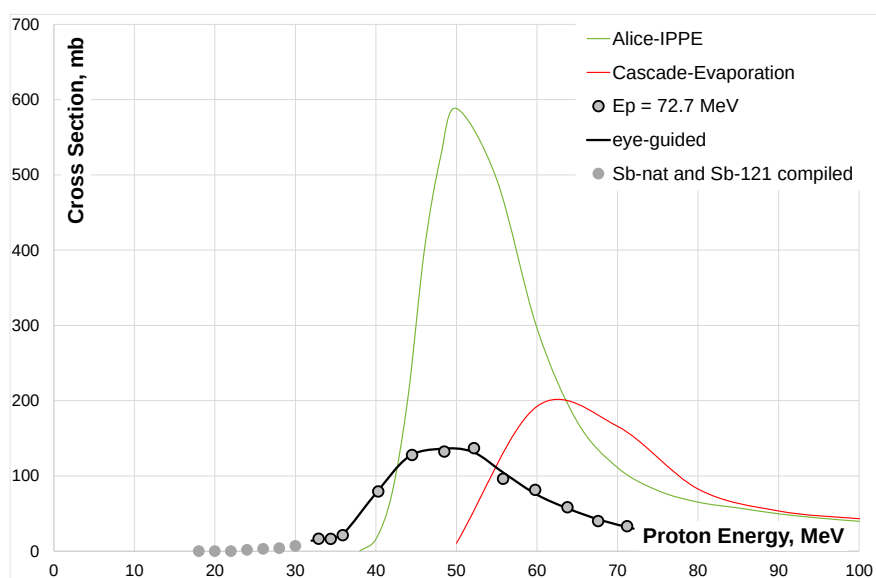
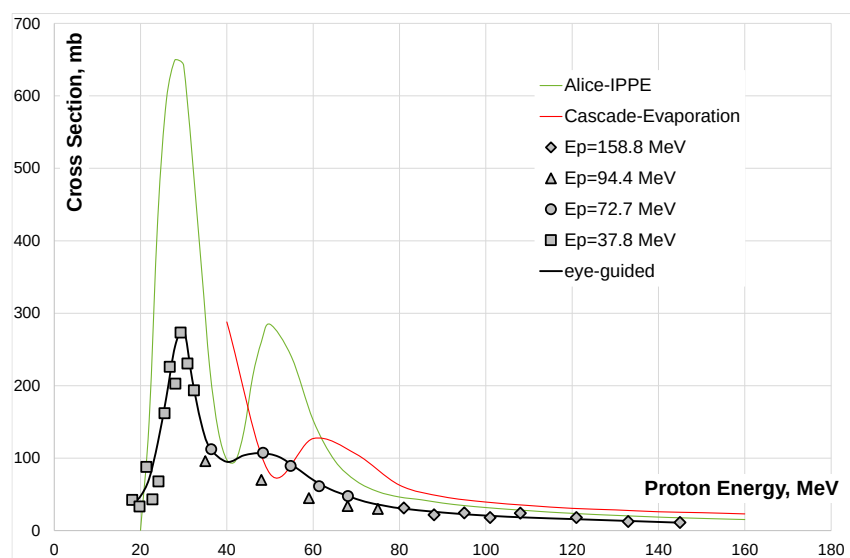


Рисунок 2.21 Сечения образования Te-119 из природной Sb (сверху), Sb-123 (посередине) и Sb-121 (внизу).

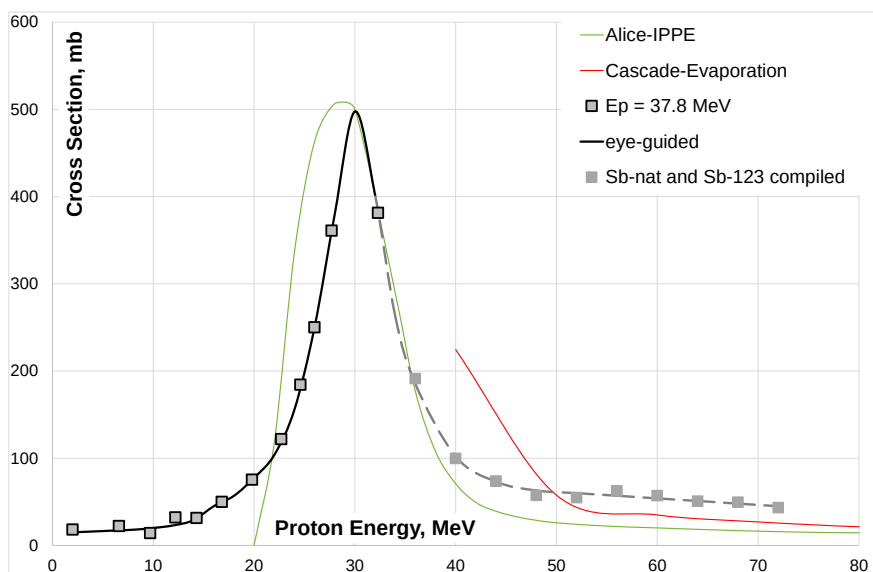
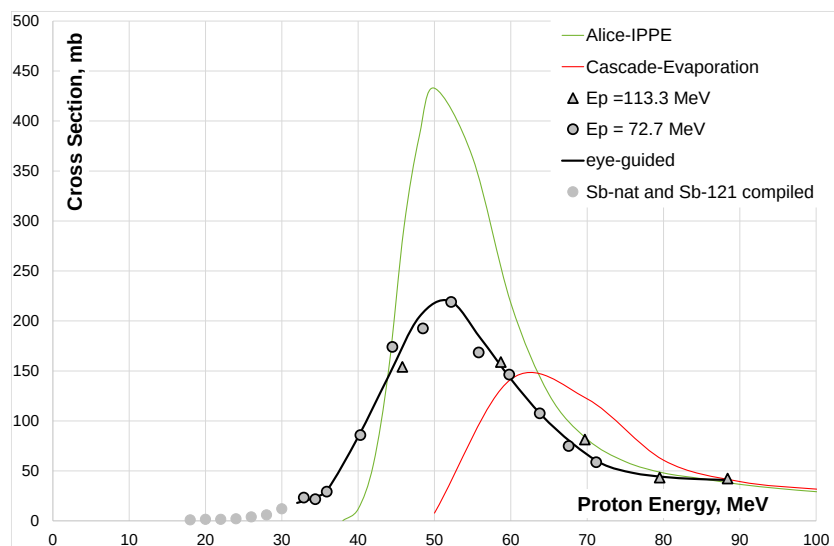
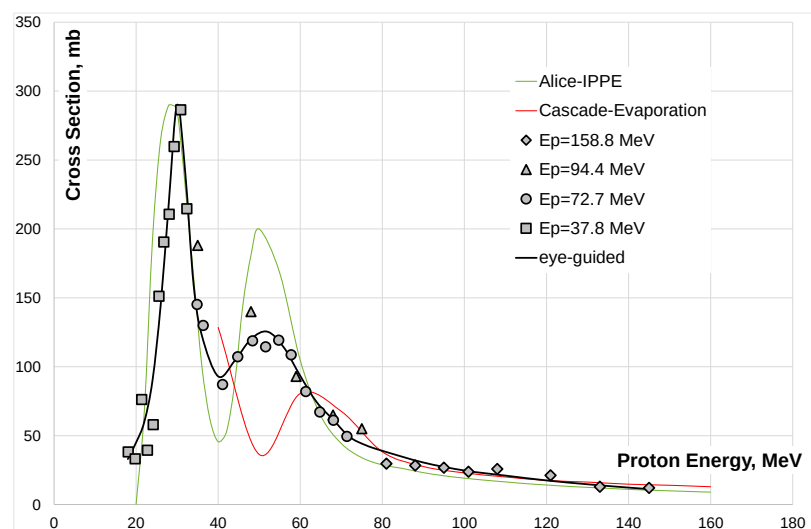


Рисунок 2.22 Сечения образования Te-119m из природной Sb (сверху), Sb-123 (посередине) и Sb-121 (внизу).

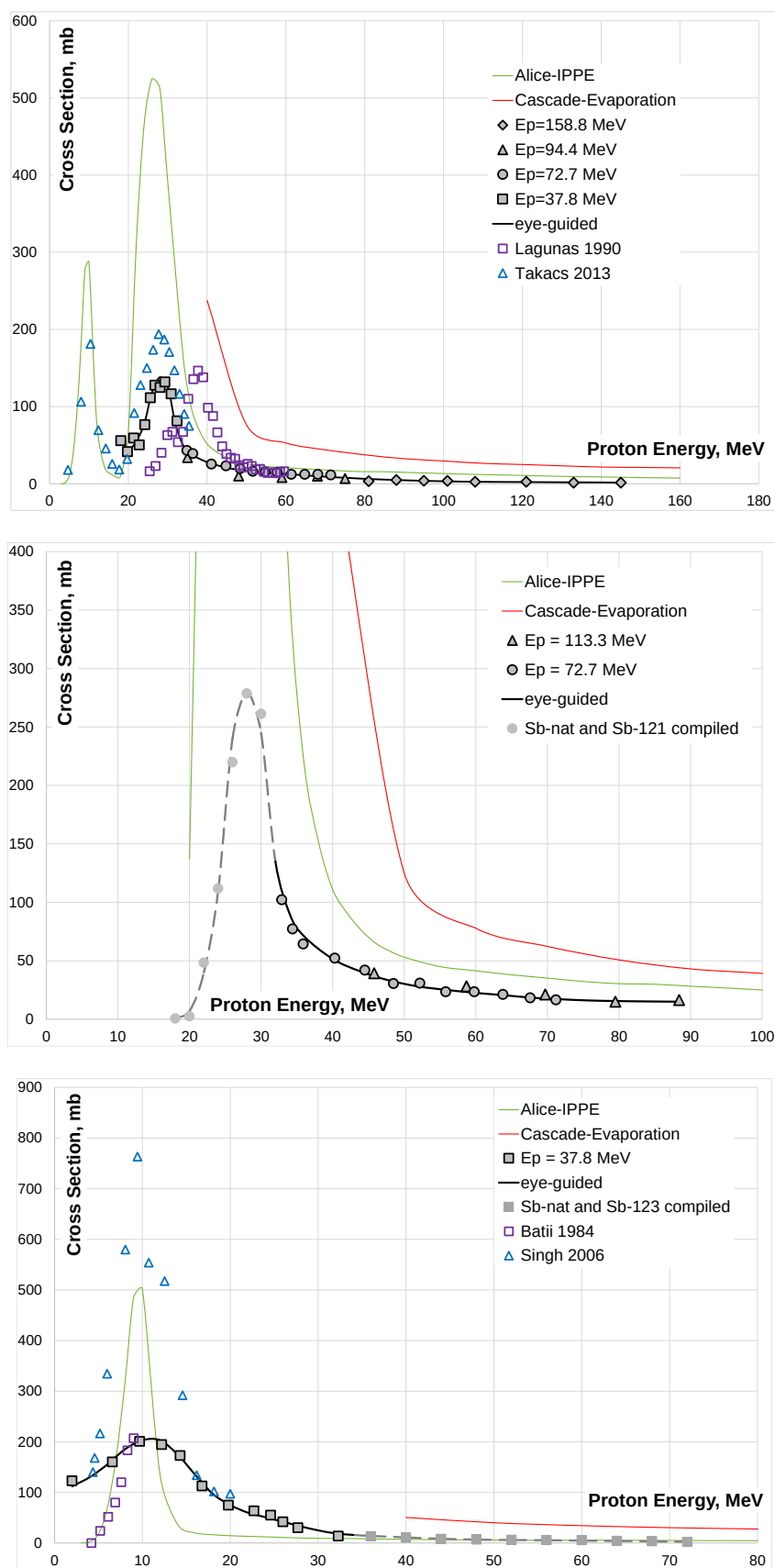


Рисунок 2.23 Сечения образования Te-121 из природной Sb (сверху), Sb-123 (посредине) и Sb-121 (внизу).

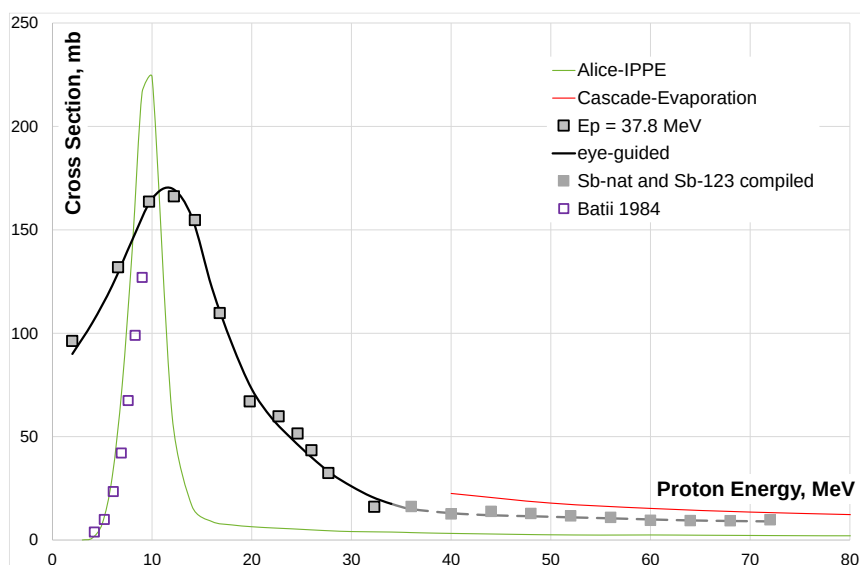
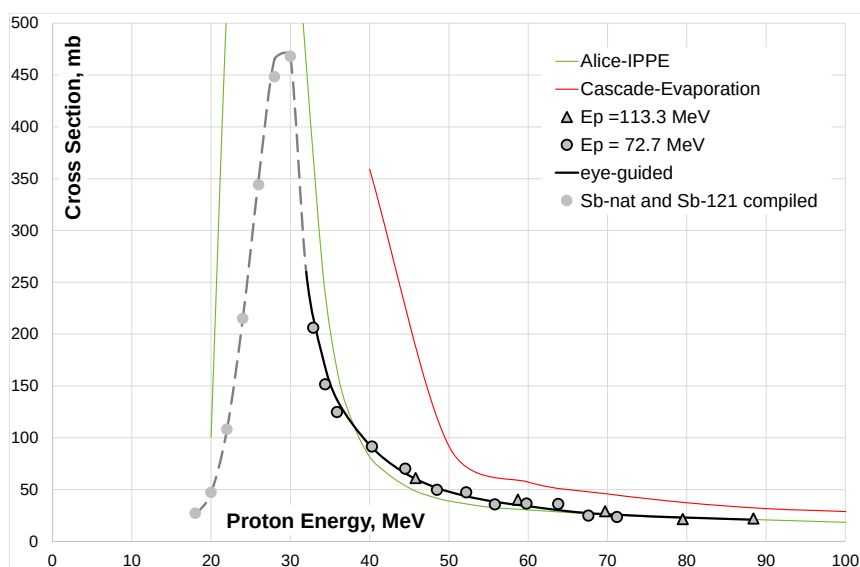
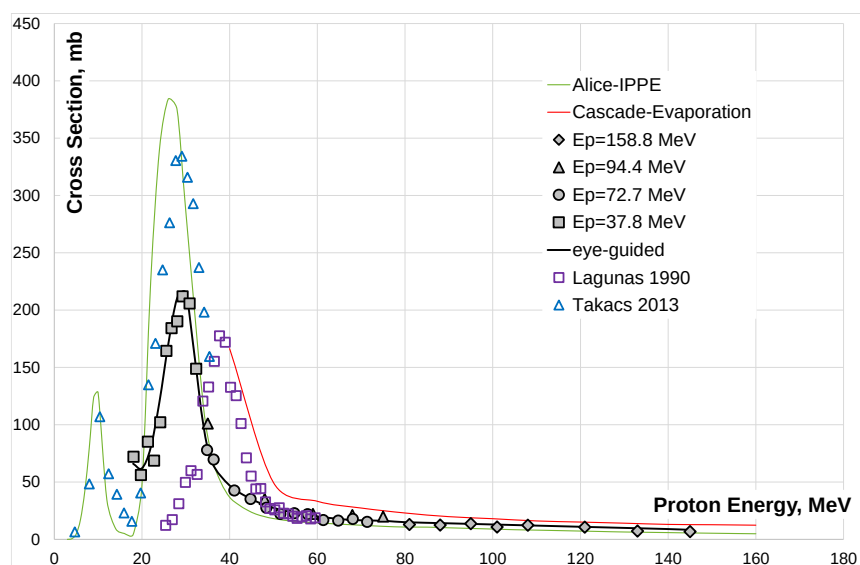


Рисунок 2.24 Сечения образования Te-121m из природной Sb (сверху), Sb-123 (посередине) и Sb-121 (внизу).

Также проведено сравнение экспериментальных данных с теоретическими, рассчитанными по предложенной ранее систематике (Б.Л. Жуйков, А.С. Ильинов. Систематика высокоспиновых изомерных отношений в реакциях с протонами средних энергий. Ядерная физика, т. 69, №4, с.1-3, (2006)). В теоретическом подходе оценивается отношение вероятностей образования ядер в метастабильном и основном состояниях в ядерных реакциях с протонами средних энергий, приводящих к вылету из ядра более двух нуклонов:

$$\sigma_m/\sigma_g \approx a \cdot \exp[-b \cdot (J_m - J_t)]$$

где

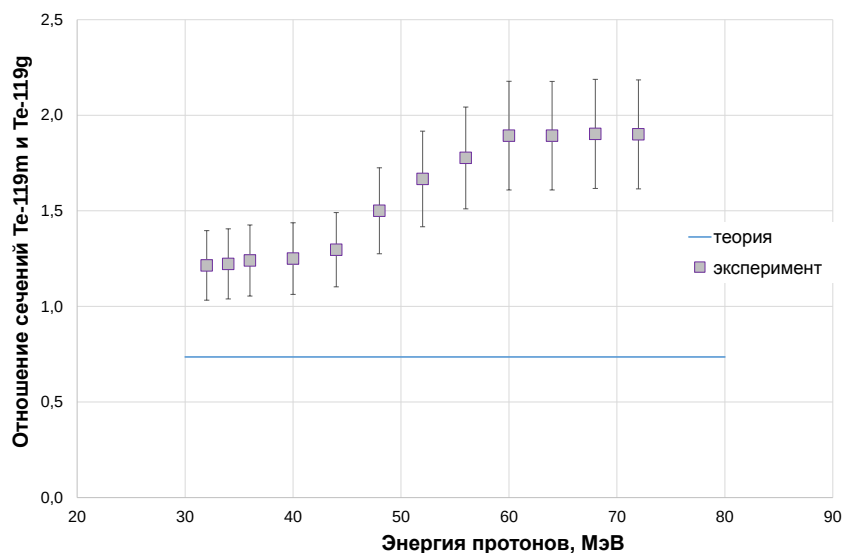
σ_m – сечение образования ядра в метастабильном состоянии;

σ_g – сечение образования ядра в основном состоянии, вычисленные по каскадно-испарительной модели;

J_m и J_t – величины спина образующегося метастабильного ядра и ядра мишени, соответственно;

a и b – эмпирические коэффициенты, $a = 2$, $b = 0.5$.

На рис. 2.25 представлены отношения сечений радиоизотопов теллура, образующихся в основном и метастабильном состоянии при облучении сурьмы протонами.



а)

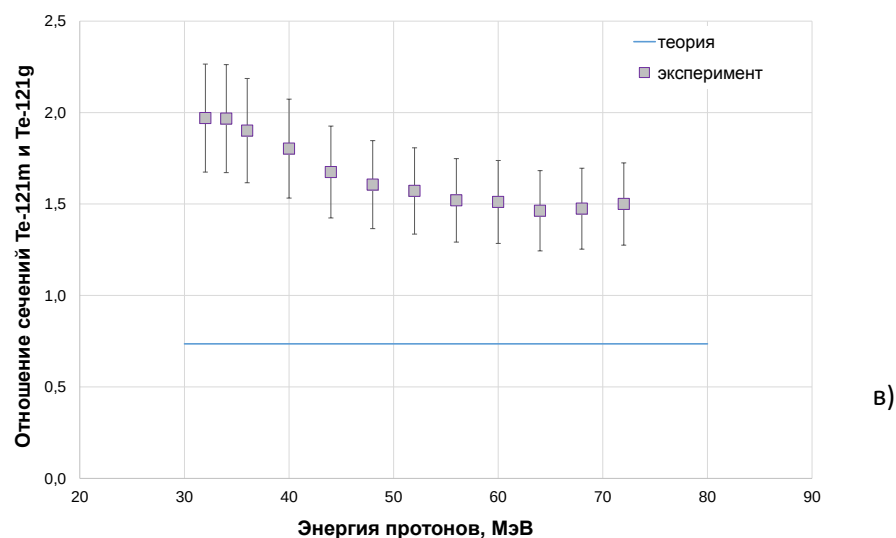
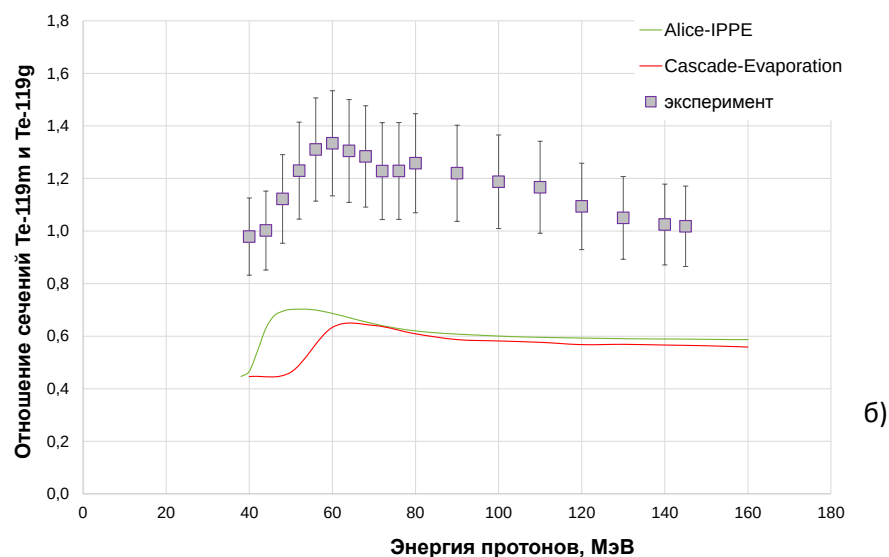


Рисунок 2.25 Отношения сечений радиоизотопов теллура в основном и метастабильном состоянии, образующихся в сурьме: а) – ^{123}Sb (p, 5n) ^{119}Te ; б) – природная сурьма: ^{121}Sb (p, 3n) ^{119}Te и ^{123}Sb (p, 5n) ^{119}Te ; в) – ^{123}Sb (p, 3n) ^{121}Te .

На рис. 2.25а представлены изомерные отношения сечений радиоизотопов теллура $^{119\text{m}}\text{Te}$ и $^{119\text{g}}\text{Te}$, образующихся из изотопа сурьмы ^{123}Sb по ядерной реакции: ^{123}Sb (p, 5n) ^{119}Te .

На рис. 2.25б представлены изомерные отношения сечений радиоизотопов теллура $^{119\text{m}}\text{Te}$ и $^{119\text{g}}\text{Te}$, образующихся из природной сурьмы, состоящей из двух изотопов ^{121}Sb (57,25%) и ^{123}Sb (42,75%). В этом случае протекают две ядерные реакции: ^{121}Sb (p, 3n) ^{119}Te и ^{123}Sb (p, 5n) ^{119}Te . На **рис. 25в** представлены отношения сечений радиоизотопов теллура $^{121\text{m}}\text{Te}$ и $^{121\text{g}}\text{Te}$, образующихся из изотопа сурьмы ^{123}Sb по ядерной реакции: ^{123}Sb (p, 3n) ^{121}Te .

Во всех случаях экспериментальные значения отношения сечений радиоизотопов теллура в метастабильном и основном состоянии превышают теоретические в 1,5-2,5 раза.

Следует отметить, что примененная для расчетов систематика не предусматривает применимость при энергии протонов ниже 70 МэВ. Каскадно-испарительная модель не работает при низких энергиях протонов.

2 ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены следующие исследования и разработки:

Совместно с Лос-Аламосской национальной лабораторией (США) продолжено изучение зависимости выходов медицинского изотопа стронция-82 от режима облучения рубидиевых мишеней при высоких токах протонного пучка и при различной форме и смещении пучка.

Внедрены элементы российской технологии получения стронция-82 в фирме ZEVACOR (США), где начинается регулярное производство продукции, которая будет поставляться в фармацевтические и медицинские учреждения США и России.

Исследованы характеристики генератора стронций-82/рубидий-82, изготавливаемого по технологии ИЯИ РАН в России – РНЦРХТ (С-Петербург) и во Франции - ARRONAX GIP/NAOGEN PHARMA (г. Нант), и используемого при диагностике кардиологических и онкологических заболеваний методом позитронной эмиссионной томографии (ПЭТ). Изучены особенности взаимодействия сорбента гидратированного диоксида олова в генераторе рубидия-82. На основе этого продемонстрирована возможность изготовления генераторов рубидия-82 с увеличенной общей рабочей ёмкостью за счёт изменения конструкции генераторной колонки, что позволит увеличить производительность генератора рубидия-82 без изменения внешней конструкции, повысит его надёжность в ПЭТ-диагностике.

Изучена радиационная стойкость экстракционно-хроматографических сорбентов DGA Resin и Sr Resin (Triskem Int.), используемых в методике выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученной протонами ториевой мишени. Показано, что коэффициенты удерживания радионуклидов не изменяются в диапазоне поглощенных доз до 298 кГр, в то время как емкость сорбентов снижается примерно на треть;

Изучено влияние pH раствора на эффективность меченая частиц гидроксиапатита (ГАП), являющегося перспективным носителем для новых радиофармпрепаратов, радионуклидом ^{223}Ra . Проведены эксперименты по десорбции ^{223}Ra в зависимости от ионной силы раствора и автордиографические исследования распределения ^{223}Ra в объеме частицы ГАП;

Изучено экстракционно-хроматографическое поведение ^{230}Pa на экстракционно-хроматографических сорбентах, перспективных для его выделения из облученной протонами ториевой мишени; испытан модельный U/Th генератор, и продемонстрирована стабильность его работы;

Получены экспериментальные сечения продуктов деления тория при облучении протонами с энергиями 141-21 МэВ, определенные по гамма-измерениям образцов с выдержкой около года после облучения; данные использованы для совершенствования методики выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra и для изучения конкуренции каналов симметричного и асимметричного деления тория;

Получены экспериментальные сечения радиоизотопов теллура, образующихся в основном и метастабильном состоянии (^{119}gTe , $^{119\text{m}}\text{Te}$, $^{121\text{g}}\text{Te}$, $^{121\text{m}}\text{Te}$) при облучении сурьмы (натуральной, ^{123}Sb и ^{121}Sb) протонами средних энергий и проведен анализ полученных данных в сравнении с рассчитанными теоретически.

2 Публикации и доклады

1. Б.Л. Жуйков. Успехи и проблемы получения медицинских радиоизотопов в России. Успехи физических наук. 2016, т. 186, №5, с. 544-549. Physics-Uspekhi (Advances in Physical Sciences), 2016, Issue 5.

2. Тютин Л.А., Жуйков Б.Л., Костеников Н.А., Рыжкова Д.В., Тлостанова М.С., Ходжибекова М.М., Шатик С.В., Зайцев В.В., Чудаков В.М. $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$ -генератор и его клиническое применение // Медицинская физика.-2016.-№2 (70) (приложение).С. 56-57. / Материалы международной научно-практической конференции «Андронная медицина и ядерная терапия». 05-07 октября 2015 г. Санкт-Петербург. 2016.

1. A.N. Vasiliev, V.S. Ostapenko, E.V.Lapshina, S.V.Ermolaev, S.S. Danilov, B.L. Zhuikov, S.N. Kalmykov. Recovery of Ra-223 from natural thorium irradiated by protons. Radiochim. Acta, 2016, v. 104, issue 8, p. 539–547.

2. V. Ostapenko, I. Sinenko, E. Arefyeva, E. Lapshina, S. Ermolaev, B. Zhuikov, S. Kalmykov. Evaluation of Pa(V) sorption on extraction chromatographic resins from nitric and hydrochloric solutions. J. Radioanal. Nucl. Chem., 2016. DOI 10.1007/s10967-016-4996-x. Принято к печати, опубликовано on-line.

3. A.N. Vasiliev, A.V. Severin, E.V. Lapshina, E. Chernykh, S.V. Ermolaev, S.N. Kalmykov. Hydroxyapatite particles as carriers for ^{223}Ra . // J Radioanal Nucl Chem., 2016. DOI: 10.1007/s10967-016-5007-y. Принято к печати, опубликовано on-line.

4. V.S. Ostapenko, A.N. Vasiliev, E.V. Lapshina, S.V. Ermolaev, B.L. Zhuikov, S.N. Kalmykov. Separation of ^{230}Pa from radionuclides generated in natural thorium irradiated by

protons. 1st International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry «RANC-2016», Budapest, Hungary, April 10-15, 2016, Book of abstracts, p.137.

5. E.V. Lapshina, S.V. Ermolaev, B.L. Zhuikov, A.N. Vasiliev, V.S. Ostapenko, S.N. Kalmykov. Extraction chromatographic separation and concentration of alpha-emitting radionuclides and lanthanides. 1st International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry «RANC-2016», Budapest, Hungary, April 10-15, 2016, Book of abstracts, p.219.

6. A.N. Vasiliev, V.S. Ostapenko, E.V. Lapshina, A.V. Severin, S.V. Ermolaev, S.N. Kalmykov. Hydroxyapatite particles as carriers for ²²³Ra. 1st International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry «RANC-2016», Budapest, Hungary, April 10-15, 2016, Book of abstracts, p.213.

7. Зобнин В.А., Васильев А.Н. Исследование деструкции экстракционно-хроматографических смол под действием γ-излучения. Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2016», МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва, 11-15 апреля 2016, с. 44.

8. Черных Е.В., Васильев А.Н. Гидроксипатит как перспективный носитель Ra-223. Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2016», МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва, 11-15 апреля 2016, с. 85.

9. Остапенко В.С., Синенко И.Л. Выделение ²³⁰Pa из облученной ториевой мишени. Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов-2016», МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва, 11-15 апреля 2016, с. 61.

10. Арефьева Е. С., Синенко И.Л., Остапенко В.С. Экстракционно-хроматографическое поведение протактиния в минеральных кислотах. Седьмая Российская школа по радиохимии и ядерным технологиям, Озерск, 12-16 сентября 2016, с. 21.

11. Синенко И.Л., Остапенко В.С. Экстракционно-хроматографическое поведение Ac(III), La(III), C(III) и Pa(V). Седьмая Российская школа по радиохимии и ядерным технологиям, Озерск, 12-16 сентября 2016, с. 86.

12. Северин А.В., Васильев А.Н., Остапенко В.С., Лапшина Е.В., Черных Е.В., Калмыков С.Н. Нанотекстурированный гидроксипатит как перспективный носитель терапевтических альфа-эмиттеров (на примере ²²³Ra). IX Международная научная конференция "Кинетика и механизм кристаллизации. Кристаллизация и материалы будущего", Иваново, Россия, 13-16 сентября 2016, с. 171.

13. Vasiliev A.N., Lapshina E.V., Severin A.V., Ermolaev S.V., Kalmykov S.N. Hydroxyapatite particles as carriers for ²²³Ra, XVI International Scientific Conference «High-

Tech in Chemical Engineering – 2016» with elements of school of young scientists, Russia, Moscow, October 10-15, 2016, p. 152.

14. M. Kiselev, B. Lambert, V. Richards, W. Scarupa, J. Zehner, F. Vraniak, T. Meaden, B. Zhuikov, S. Ermolaev. New 70 MeV Cyclotron Facility for Production of Medical Isotopes. 24th International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry (CAARI 2016). October 30 –November 4, 2016. Worth, Texas, USA.

Защита диссертации

Получение ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученного протонами природного тория. Кандидатская диссертация по специальностям 02.00.14 - Радиохимия, 02.00.09 - Химия высоких энергий (хим. науки). Автор: Васильев Александр Николаевич, Научные руководители: Ермолаев С.В., Калмыков С.Н. Защищена в совете Д 501.001.42 при МГУ имени М.В. Ломоносова, Химический факультет 12 мая 2016 г.

3 Лаборатория атомного ядра. Совершенствование средств и методов аварийной радиационной защиты для обеспечения пожарной безопасности радиационно-опасных объектов и экологической чистоты ядерной энергетики

Научный руководитель: М.Н.Лифанов, нс, кфмн.

Основные исполнители

Зуев С.В., снс, кфмн

Мордовской М.В, зав.сект., кфмн

Исполнители

Бурмистров Ю.М., мнс

Скоркин В.М., снс, кфмн

3 РЕФЕРАТ

Отчёт 9 с., 3 рис., 1 табл.

СРЕДСТВО ИНДИВИДУАЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ, РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНЫЕ СВОЙСТВА, НЕЙТРОН-АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ, ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ЭЛЕМЕНТОВ, ГАММА-ПОГЛОЩЕНИЕ

Цель работы – совершенствование средств и методов аварийной радиационной защиты.

В процессе исследований создана установка для исследования радиационно-защитных свойств материалов и проведены экспериментальные исследования содержания тяжелых металлов в образцах материалов. В результате исследований впервые разработаны способы оценки тяжести аварийных сочетанных радиационных поражений при многофакторном облучении и прогнозирования распределения доз индивидуальных поражений при ядерных и радиационных авариях.

3 ВВЕДЕНИЕ

Исследования радиационных полей, возникающих при авариях радиационно-опасных объектов, проведённые в ЛАЯ с 1980-х годов ещё до аварии на ЧАЭС, привели к созданию новых средств индивидуальной защиты (СИЗ) – аварийной радиационно-защитной одежды. Главным итогом работы, проведённой ИЯИ в сотрудничестве с НИИ текстильной и галантерейной промышленности, ВНИИ противопожарной обороны и другими организациями, стало создание отрасли промышленности, производящей новые СИЗ. В настоящее время в России серийно выпускается СИЗ типа «РЗК» (ТУ 8570-047-38996367-2004), которое было введено в нормы снабжения сотрудников МЧС (*приказ Министра по делам ГО и ЧС №779 от 25.12.2006*). Разработанные в ЛАЯ параметры РЗС «РЗК» вошли в нормативные документы Государственной противопожарной службы

(НРБ 162-2002). Актуальность темы подтверждена на заседании Совета безопасности РФ (30.10.2015), посвящённом обеспечению ядерной, радиационной и химической безопасности РФ. Интерес к тематике материалов и СИЗ, имеющих радиационно-защитные свойства, проявляется как в России, так и за рубежом. В этих условиях является актуальным проведение экспертиз для проверки эффективности материалов и изделий, которые предполагается использовать в аварийных радиационных полях. Также требуется поверка СИЗ, находящихся в эксплуатации. При оснащении спасателей СИЗ нового типа выявилась необходимость разработки новых подходов для проведения дозиметрического контроля в условиях многофакторного радиационного воздействия, применения обычной боевой и специальной защитной одежды, локальных защитных средств при выполнении аварийных работ.

3 ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Разработан способ оценки тяжести аварийных сочетанных радиационных поражений при многофакторном облучении. Способ основан на корреляционных связях дозовых характеристик источников различных типов излучений. Он состоит в инструментальном определении эквивалентной дозы наиболее существенного из воздействующих радиационных факторов (гамма излучения) с добавлением в эффективную эквивалентную дозу вклада не измеряемых аварийных доз иных поражающих факторов – бета излучения и инкорпорации йода-131.

Разработан способ прогнозирования распределения доз индивидуальных поражений при ядерных и радиационных авариях, который даёт возможность количественно оценить средний медицинский или социально-экономический ущерб, а также обосновать наиболее эффективные мероприятия по снижению этого ущерба. Получено положительное решение о выдачи патента на изобретение.

Разработана методика исследования состава и радиационно-защитных свойств материалов и исследования однородности различных материалов с использованием методов нейтронно-активационного анализа и γ -поглощения в широком диапазоне энергий γ -квантов. Данная разработка позволяет оградить производство от поступления исходных материалов, не отвечающих установленным требованиям, проводить контроль конечной продукции, а также проверять СИЗ, находящихся в эксплуатации. Особенностью методики является исследование γ -поглощения в широкой области энергии γ -квантов, используя γ -источники, произведенные на фотонейтронном источнике ИЯИ РАН, а также проведение нейтронно-активационного анализа для исследования элементного состава материала. Методика проверена на образцах защитных материалов,

предоставленных изготовителем СИЗ для пожарных, охраняющих АЭС. Результат исследования представлен на конференции «ЯДРО-2016».

В процессе отработки методики исследования состава и РЗС материалов создана установка для исследования радиационно-защитных свойств материалов, а также методика для проведения анализа их состава. Установка позволяет проводить измерения пространственного распределения поглотителей, поверхностной плотности и ее однородности по большим площадям, изучать энергетическую зависимость поглощения и элементный состав материала. Установка для исследования радиационно-защитных свойств материалов включает источник ионизирующего излучения, коллиматоры, детектор ионизирующего излучения, прошедшего через образец, систему регистрации и обработки сигналов с детектора. В качестве источника ионизирующего излучения используется набор образцовых источников ОСГИ ($^{137}\text{Cs} - E_\gamma = 662 \text{ кэВ}$, $^{57}\text{Co} - E_\gamma = 122 \text{ кэВ}$ и др.). Источники ионизирующих излучений с энергиями, отличными от энергий образцовых источников ($^{152}\text{Eu} - E_\gamma = 122 \text{ и } 344 \text{ кэВ}$, $^{186}\text{Re} - E_\gamma = 137 \text{ кэВ}$ и др.), получают с помощью фотонейтронного источника ИН-ЛУЭ ИЯИ, облучая нейтронами соответствующие изотопы в рабочей камере источника. Фотонейтронный источник используется также для активационного облучения образцов изучаемых материалов. Последующий нейтронно-активационный анализ с использованием низкофонового HPGe-спектрометра позволяет исследовать их элементный состав. На рис. 3.1 приведена схема установки.

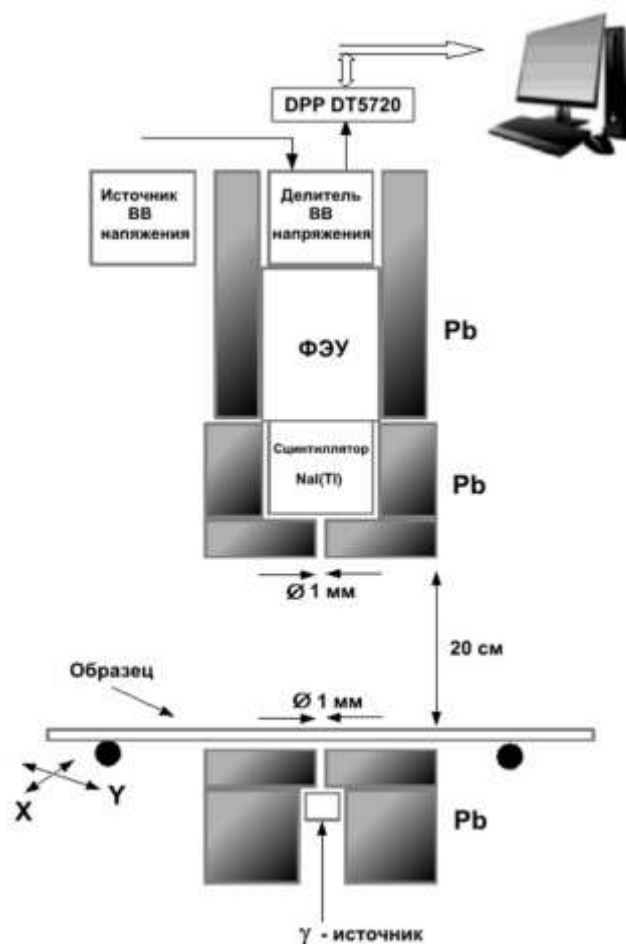


Рисунок 3.1 – Схема установки для исследования радиационно-защитных свойств материалов.

В детектирующей системе установки используется гамма-спектрометр на основе кристалла NaI(Tl), высоковольтного источника, цифрового сигнального процессора CAEN DPP 5720 и компьютера. Расстояние источник–детектор может изменяться по условиям эксперимента для оптимизации соотношения эффект/фон при разных интенсивностях источника. Проведены экспериментальные исследования содержания тяжелых металлов в образцах защитных материалов.

Использование широкого диапазона энергий γ -облучателей позволяет с хорошей точностью определять зависимость коэффициента ослабления от энергии и содержание тяжелых элементов в материале. Различные зависимости коэффициентов поглощения от энергии для разных материалов в некоторых случаях позволяют различать тип введенного поглотителя в исследуемый материал.

3 ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ состояния ядерной энергетики показывает, что попутно с развитием данной отрасли необходимы совершенствование существующих СИЗ, организация регламентных проверок СИЗ, находящихся в эксплуатации, и экспертных оценок импортных СИЗ и материалов. В этой связи необходимо дальнейшее развитие системы контроля радиационно-защитных свойств исходного сырья, полуфабрикатов и готовых изделий. Для решения этих задач создана установка для исследования радиационно-защитных свойств материалов и проведены экспериментальные исследования содержания тяжелых металлов в образцах материалов. Также разработаны способы оценки тяжести аварийных сочетанных радиационных поражений при многофакторном облучении и прогнозирования распределения доз индивидуальных поражений при ядерных и радиационных авариях.

Результаты проведенных в 2016 году работ доложены на Международной конференции NUCLEUS 2016, включены в список важнейших результатов, полученных в 2016 г.

3 ПУБЛИКАЦИИ

1 Б.А. Бенецкий Проблема дозиметрии при аварийном сочетанном облучении и возможное её решение на примере учета воздействия ряда радиационных факторов при аварии на ЧАЭС Краткие сообщения по физике – ФИАН – М. – 1-2016, с.12

2 А.В.Андреев, Ю.М.Бурмистров, С.В.Зуев, Е.С.Конобеевский, М.В.Мордовской, В.Г.Недорезов Возможности определения микропримесей в материалах на измерительно-активационном комплексе на базе фотонейтронного источника Известия РАН. Сер. Физ. 2017. Т. 81 (в печати)

3 Ю.М.Бурмистров, С.В.Зуев, Е.С.Конобеевский, М.Н.Лифанов, М.В.Мордовской, В.Г.Недорезов Исследование радиационно-защитных свойств материалов с использованием метода γ -поглощения в широком диапазоне энергий γ -квантов Известия РАН. Сер. Физ. 2017. Т. 81 (в печати)

Патенты:

1 Бенецкий Б.А., Плотникова М.В. Способ прогнозирования распределений доз индивидуальных поражений при ядерных и радиационных авариях (заявка №2015120745, решение о выдаче патента на изобретение от 11.03.2016 г).

2 Бурмистров Ю.М., Зуев С.В., Конобеевский Е.С., Лифанов М.Н., Мордовской М.В. Стенд для исследования радиационно-защитных свойств материалов (подана заявка на патент на полезную модель).

Доклады на международных конференциях

- 1 A.V.Andreev, Yu.M.Burmistrov, N.A.Fedorov, E.S.Konobeevsky, M.V.Mordovskoy, V.G.Nedorezov, S.V.Zuyev A possibility of determination micro-impurities in materials using a measuring-activation complex on the base of photoneutron source 66-я Международная конференция по проблемам ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра «ЯДРО-2016», Саров, 11-14 октября 2016 г. Тезисы, с. 142
- 2 Yu.M.Burmistrov, E.S.Konobeevsky, M.N.Lifanov, M.V.Mordovskoy, V.G.Nedorezov, S.V.Zuyev Study of radiation-protective properties of materials using γ -ray attenuation method in a wide range of γ -energies 66-я Международная конференция по проблемам ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра «ЯДРО-2016», Саров, 11-14 октября 2016 г. Тезисы, с. 174
- 3 В.П.Крапивко, В.М.Скоркин Экологическое состояние некоторых антропогенных радиационных аномалий Подмосковья Доклад на 10-ой Международной конференции «Ядерная и радиационная физика», 8–11 сентября 2015г.- г. Курчатов, Казахстан. Сборник тезисов. с. 156. РГП НЯЦ РК. 2015. – 204с.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В отчёте представлены результаты фундаментальных и прикладных работ, проведённых по государственному заданию в соответствии с планом научных исследований ИЯИ РАН на 2016 год. Из полученных результатов можно выделить следующие важнейшие результаты работ.

В области разработки новых методов дистанционной лучевой терапии исследованы характеристики медицинских пучков протонов, сформированных гребенчатыми фильтрами. Показано, что реальное глубинное дозовое распределение может отличаться от расчётного в виде спада дозы в области дистального края модифицированного пика Брэгга. Решением данной проблемы может стать усложнение расчётной геометрии, включающее в себя введение в систему остальных формирующих устройств, таких как первичный и вторичный рассеиватели.

Запущен в работу анализатор «PTWT41029, который показал высокую эффективность набора дозовых распределений и надёжность работы.

Удовлетворительный по качеству пучок с энергией 209 МэВ исследовался визуально по люминофору в процедурной КПП. Разработаны предложения по улучшению контроля качества терапевтического пучка.

Проведены исследования физико-дозиметрических характеристик микроисточников на основе иттербия-169 (с удельной активностью 185 ГБк) в воздухе и в водном фантоме. Показано, что мощность экспозиционной дозы в воздухе на расстоянии 1 м от источника составляет 64,1 нА/кг, слой половинного ослабления поглощённой дозы в водяном фантоме – 0,9 см. Измеренные дозиметрические данные аппроксимируются степенными функциями, хорошо совпадающими с расчётными, полученными на основе спектральных характеристик Yb-169.

Разработанные иттербиевые источники обладают всеми основными требованиями, предъявляемыми к медицинским источникам для контактной лучевой терапии. После проведения клинических испытаний, эти источники можно будет рекомендовать для применения в медицине.

В радиоизотопных исследованиях совместно с Лос-Аламосской национальной лабораторией (США) продолжено изучение зависимости выходов медицинского изотопа стронция-82 от режима облучения рубидиевых мишеней при высоких токах протонного пучка и при различной форме и смещении пучка. Внедрены элементы российской технологии получения стронция-82 в фирме ZEVACOR (США), где начинается регулярное производство продукции, которая будет поставляться в фармацевтические и медицинские учреждения США и России.

Исследованы характеристики генератора стронций-82/рубидий-82, изготавливаемого по технологии ИЯИ РАН в России – РНЦРХТ (С-Петербург) и во Франции - ARRONAX GIP/NAOGEN PHARMA (г. Нант), и используемого при диагностике кардиологических и онкологических заболеваний методом позитронной эмиссионной томографии (ПЭТ). Изучены особенности взаимодействия сорбента гидратированного диоксида олова в генераторе рубидия-82. На основе этого продемонстрирована возможность изготовления генераторов рубидия-82 с увеличенной общей рабочей ёмкостью за счёт изменения конструкции генераторной колонки, что позволит увеличить производительность генератора рубидия-82 без изменения внешней конструкции, повысит его надёжность в ПЭТ-диагностике.

Совместно с МГУ им. М.В. Ломоносова усовершенствована методики получения медицинских радионуклидов актиния-225, радия-223 а также протактиния-230, из металлического тория, облученного протонами средних энергий. Изучена радиационная стойкость экстракционно-хроматографических сорбентов используемых в методике выделения. Изучено влияние pH раствора на эффективность меченая частиц гидроксиапатита, являющегося перспективным носителем для новых радиофармпрепаратов, радионуклидом ^{223}Ra . Изучено экстракционно-хроматографическое поведение ^{230}Ra на некоторых экстракционно-хроматографических сорбентах.

Получены экспериментальные значения сечений продуктов деления тория при облучении протонами с энергиями 141-21 МэВ, и изучена конкуренция каналов симметричного и асимметричного деления тория.

Получены экспериментальные сечения радиоизотопов теллура, образующихся в основном и метастабильном состоянии (^{119g}Te , ^{119m}Te , ^{121g}Te , ^{121m}Te) при облучении сурьмы (натуральной и обогащенной - ^{123}Sb и ^{121}Sb) протонами средних энергий и произведено сравнение с теоретическими значениями, рассчитанными с использованием новой систематики для изомерных соотношений.

В области совершенствования средств и методов аварийной радиационной защиты для обеспечения пожарной безопасности радиационно-опасных объектов и экологической чистоты ядерной энергетики создана установка для исследования радиационно-защитных свойств материалов и проведены экспериментальные исследования содержания тяжёлых металлов в образцах материалов; разработаны способы оценки тяжести аварийных сочетанных радиационных поражений при многофакторном облучении и прогнозирования распределения доз индивидуальных поражений при ядерных и радиационных авариях.

Полученные результаты находятся на уровне лучших мировых или превышают их.