

УСТРОЙСТВА И ИЗДЕЛИЯ НА ОСНОВЕ  
НАНОМАТЕРИАЛОВ И НАНОТЕХНОЛОГИЙ

УДК 544.58

РАЗРАБОТКА ПРОТОТИПА ГЕНЕРАТОРА ГАЗООБРАЗНОГО  $^{220}\text{Rn}$   
ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ РАДИОНУКЛИДА  $^{212}\text{Pb}$

© 2023 г. А. А. Артюхов<sup>1,\*</sup>, А. А. Артюхов<sup>1</sup>, А. М. Березов<sup>1</sup>, П. Н. Ивлиев<sup>1</sup>, К. О. Королев<sup>1</sup>,  
Я. М. Кравец<sup>1</sup>, Т. М. Кузнецова<sup>1</sup>, В. В. Лебедев<sup>1</sup>, К. А. Маковеева<sup>1</sup>,  
А. В. Рыжков<sup>1</sup>, С. Ф. Соловьев<sup>1</sup>, Д. Ю. Чувилин<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, Москва, Россия

\*E-mail: artukhov\_aa@nrcki.ru

Поступила в редакцию 16.02.2023 г.

После доработки 16.02.2023 г.

Принята к публикации 09.06.2023 г.

Описаны результаты работы по созданию прототипа генератора  $^{212}\text{Pb}$ , получаемого эманационным методом при помощи газообразного радионуклида  $^{220}\text{Rn}$ . Генератор обладает технологической простотой и удобными эксплуатационными характеристиками. Эффективность выделения  $^{220}\text{Rn}$  при такой конструкции составляет более 90%, что говорит о приемлемости такого вида источников для получения  $^{212}\text{Pb}$  высокой радионуклидной чистоты для нужд ядерной медицины.

DOI: 10.56304/S1992722323040040

ВВЕДЕНИЕ

При терапии онкологических заболеваний все более широкое применение находят  $\alpha$ -излучающие радионуклиды. Это связано с большой начальной энергией (5–8 МэВ) и коротким пробегом (десятки микрон)  $\alpha$ -частиц в биологических тканях и, следовательно, высоким уровнем энерговыделения в области локализации распадающихся нуклидов. Носители  $\alpha$ -излучающих радионуклидов (моноклональные антитела, пептиды) с высокой специфичностью позволяют доставлять их точно в опухолевый узел или метастатический очаг (таргетная терапия). Благодаря малым пробегам  $\alpha$ -частиц возможно селективное воздействие излучения на патологические объекты с минимальной лучевой нагрузкой на окружающие здоровые ткани.

$^{212}\text{Pb}$  является перспективным радионуклидом с точки зрения таргетной  $\alpha$ -терапии для лечения

небольших раковых или метастатических форм [1, 2]. Радионуклид  $^{212}\text{Pb}$  является  $\beta$ -эмиттером, но его дочерние нуклиды ( $^{212}\text{Po}$  и  $^{212}\text{Bi}$ ) подвергаются  $\alpha$ -распаду, благодаря чему  $^{212}\text{Pb}$  рассматривается как *in vivo*-генератор  $\alpha$ -частиц. Период полураспада  $^{212}\text{Pb}$  составляет 10.64 ч, средняя энергия  $\alpha$ -частиц дочерних нуклидов – 7.8 МэВ. Пробег  $\alpha$ -частиц в биологической ткани составляет менее 100 мкм, что соответствует нескольким диаметрам раковой клетки, а линейная передача энергии достигает ~80 кэВ/мкм [2].

$^{212}\text{Pb}$  принадлежит радиоактивному ряду долгоживущего материнского изотопа  $^{228}\text{Th}$  ( $T_{1/2} = 1.91$  г) (рис. 1) и может быть получен с использованием лабораторных генераторов.

В настоящее время наиболее перспективными представляются два подхода к созданию лабораторных генераторов  $^{212}\text{Pb}$ : сорбционный и эманацион-

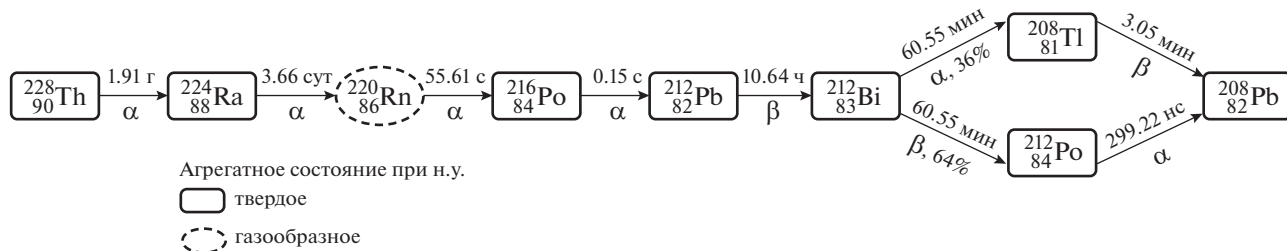


Рис. 1. Фрагмент радиоактивного ряда  $^{232}\text{Th}$ .

ный. Первый основан на элюировании активности  $^{212}\text{Pb}$  с ионообменной колонки, на которую был предварительно нанесен  $^{224}\text{Ra}$ . Этот метод лежит в основе  $^{224}\text{Ra}/^{212}\text{Pb}$ -генератора [3], основными достоинствами которого являются высокий выход радионуклида  $^{212}\text{Pb}$ , простота конструкции и эксплуатации. К главным недостаткам сорбционно-генератора относятся: короткое время эффективной работы  $^{224}\text{Ra}$ -содержащей ионообменной колонки (4–5 сут), что определяется периодом полураспада  $^{224}\text{Ra}$  ( $T_{1/2} = 3.66$  сут), а также отсутствие гарантии чистоты целевого продукта от материнских радионуклидов и, как следствие, необходимость в проведении контроля чистоты полученного радионуклида.

Перечисленных недостатков лишен генератор  $^{212}\text{Pb}$ , основанный на эманационном подходе. Способ получения радионуклида  $^{212}\text{Pb}$  заключается в эманировании газообразного радионуклида  $^{220}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 55.61$  с) из носителя, содержащего  $^{228}\text{Th}$ , с последующим перемещением  $^{220}\text{Rn}$  в объем накопителя, где происходит его распад и накопление целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$ . Преимуществами этого способа являются длительный период работы генератора (до двух лет), что обеспечивает значительное снижение дозовой нагрузки на персонал и, что особенно важно, достигается высокая радионуклидная чистота конечного продукта за счет разделения материнских радионуклидов  $^{228}\text{Th}$  и  $^{224}\text{Ra}$ , находящихся в твердофазном состоянии, и газообразного продукта распада  $^{220}\text{Rn}$  [4].

В литературе описаны несколько вариантов генераторов  $^{212}\text{Pb}$  на основе эманирования  $^{220}\text{Rn}$ , которые имеют различия как по типу источника эманирования, так и в конструкции генератора [5–8]. Основными недостатками, относящимися к устройству эманирования  $^{220}\text{Rn}$ , являются нестабильность эманлирующей способности источника, сложность конструкции и наличие длительных технологических операций, предусматривающих ручные работы с радиоактивными материалами.

Создание эманационного генератора  $^{212}\text{Pb}$  предусматривает решение ряда научных и инженерных задач, основными из которых являются:

- разработка источника эманирования газообразного радионуклида  $^{220}\text{Rn}$ ;
- разработка конструкции и изготовление генератора газообразного радионуклида  $^{220}\text{Rn}$ ;
- разработка способов улавливания  $^{220}\text{Rn}$  и накопления целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$ .

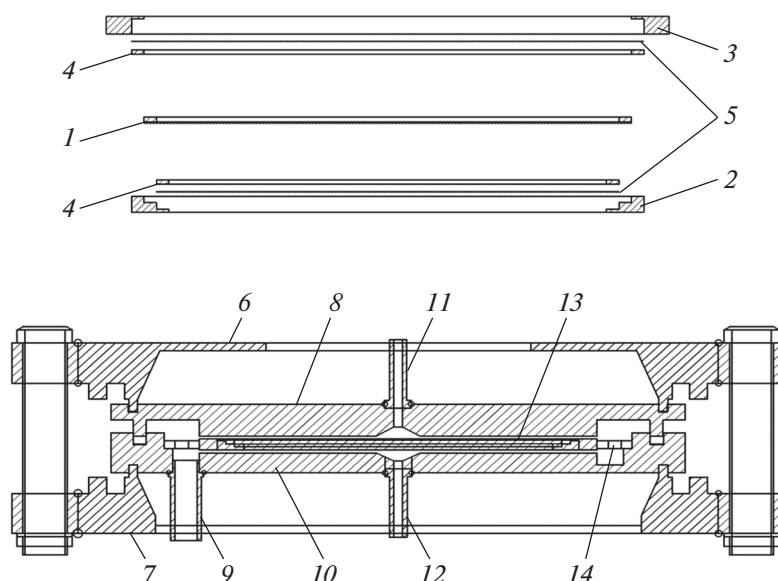
Цель настоящего исследования – разработка и создание прототипа генератора газообразного радионуклида  $^{220}\text{Rn}$ . Основные задачи при проведении исследования заключались в разработке кон-

струкции генератора, определении оптимальных параметров его работы и итоговой эффективности получения газообразного  $^{220}\text{Rn}$  для производства целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$ .

## МЕТОДЫ

При разработке конструкции генератора  $^{220}\text{Rn}$  необходимо учитывать ядерно-физические и химические свойства как стартовых радионуклидов ( $^{228}\text{Th}$  и  $^{224}\text{Ra}$ ), так и дочерних продуктов распада (ДПР), входящих в радиоактивный ряд, в первую очередь  $^{220}\text{Rn}$ . Основные ограничения при работе с газообразным  $^{220}\text{Rn}$  накладываются в связи с его ультракоротким периодом полураспада (55.61 с). Принцип работы генератора основан на эманировании  $^{220}\text{Rn}$  из твердофазного источника, содержащего материнские изотопы  $^{228}\text{Th}$  и  $^{224}\text{Ra}$ , с дальнейшим перемещением  $^{220}\text{Rn}$  в объем продуваемого пространства за счет свободной диффузии. Поэтому для достижения высокой эффективности работы генератора расстояние от источника эманирования до продуваемого пространства должно быть сведено к минимуму и находиться в пределах 2 мм. Геометрия продуваемого пространства и организация потока газа-носителя должны обеспечивать равномерный обдув источника эманирования, при этом оптимальная кратность обмена в объеме продуваемого пространства находится на уровне 50 об./мин при минимальном расходе газа-носителя. В процессе эксплуатации генератора не допускается возможность попадания материнских радионуклидов в каком-либо виде в поток газа-носителя. Материалы, применяемые для изготовления генератора, должны иметь достаточную радиационную стойкость для обеспечения работы устройства продолжительностью до двух лет. Схема мембранного устройства и генератора  $^{220}\text{Rn}$  представлена на рис. 2.

В мембранном устройстве в качестве носителя  $^{228}\text{Th}$  используется микрофильтрационная фторопластовая гидрофильная мембрана МФФК-3Г, которая представляет собой пористую полимерную пленку, гидрофилизированную олигомером уретана на подложке из лавсана, и имеет следующие характеристики: толщина – 140 мкм, размер пор – 0.45 мкм, производительность по воде при давлении 0.05 МПа – 10400  $\text{дм}^3/(\text{м}^2 \text{ ч})$ , точка пузырька по воде – 1.4 атм. (ТУ 225-009-43153636-2015). На мембрану предварительно наносили соединение  $^{228}\text{Th}$ , для этого раствор нитрата тория (14 М  $\text{HNO}_3$ , активность  $^{228}\text{Th}$  – 120 кБк, объем – 500 мкл) с помощью дозатора равномерно (порциями по 20 мкл) распределяли по площади мембраны  $S = 48 \text{ см}^2$  ( $D = 78 \text{ мм}$ ), размещенной в специальном держателе. В процессе нанесения раствора на мембрану происходит химическое взаимодействие ма-



**Рис. 2.** Схема мембранного устройства и генератора  $^{220}\text{Rn}$ : 1 – мембрана несущая, 2 – защитный корпус нижний, 3 – защитный корпус верхний, 4 – кольцо фиксирующее, 5 – мембрана защитная, 6 – фланец верхний, 7 – фланец нижний, 8 – крышка генератора верхняя, 9 – входной штуцер, 10 – крышка генератора нижняя, 11 – выходной штуцер верхний, 12 – выходной штуцер нижний, 13 – мембранное устройство, 14 – центровочная вставка.

теринских радионуклидов ( $^{228}\text{Th}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ) с материалами мембраны, что приводит к химической фиксации их на мембране. Затем проводится сушка мембраны.

Мембранное устройство представляет собой разборную оправу из верхнего 3 и нижнего 2 защитных корпусов, внутри которых размещена несущая мембрана 1, закрепленная между двумя фиксирующими кольцами 4 и двумя защитными гидрофобными мембранами 5. Для изготовления защитных мембран использовали фторопластовую (фторопласт-4) пленку МФ-ФМ-400 толщиной  $0.3 \pm 0.03$  мм, наибольший размер пор – 0.5 мкм, производительность по воздуху при 1 кПа –  $20 \text{ м}^3/\text{м}^2 \text{ ч}$  (ТУ 5131-004-10835289-2013). Установка дополнительных защитных мембран позволит исключить попадание родительских изотопов в поток газа-носителя в случае радиолитического распада несущей мембраны при длительной эксплуатации.

Мембранное устройство устанавливается между верхним 8 и нижним 10 корпусами с зазором 0.3 мм и центрируется вставкой 14, в которой имеются отверстия для свободного прохождения газа-носителя. Зазор между мембранным устройством и корпусами обеспечивается за счет приваривания отрезков калиброванной проволоки из нержавеющей стали длиной 20 мм и диаметром 0.3 мм методом лазерной сварки. Отрезки проволоки привариваются радиально симметрично в количестве шести штук на каждый корпус генератора. Мембранное устройство устанавливается в центральной части генератора таким образом,

чтобы происходил равномерный обдув поверхностей двух защитных мембран потоком газа-носителя от периферии к центру. Обеспечение малого зазора (0.2–0.4 мм) необходимо для уменьшения свободного пространства между защитной мембраной и корпусом, что приводит к увеличению кратности обмена при продувке газом-носителем. Газ-носитель подается через входной штуцер 9, выход газа-носителя с  $^{220}\text{Rn}$  осуществляется через выходные штуцеры 11 и 12. Подача и отвод газа-носителя осуществляются по силиконовым трубкам, герметично установленным на соответствующие штуцеры 9, 11 и 12. Верхний 8 и нижний 10 корпуса размещаются между верхним 6 и нижним 7 фланцами, закрепленными болтовым соединением.

Основные элементы генератора  $^{220}\text{Rn}$  выполнены из коррозионностойкой стали 12Х18Н10Т, этот материал может быть заменен на аналог, кроме того, возможно использование других коррозионностойких сталей и сплавов. Центрирующая вставка 14 может быть выполнена из термостойкого полимера (температура эксплуатации не менее  $100^\circ\text{C}$ ) либо из коррозионностойкого сплава.

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Основными целями экспериментальных работ были определение итоговой эффективности генератора  $^{220}\text{Rn}$  и установление оптимальных параметров эксплуатации устройства. Для этого провели серию экспериментов по изучению влияния темпера-

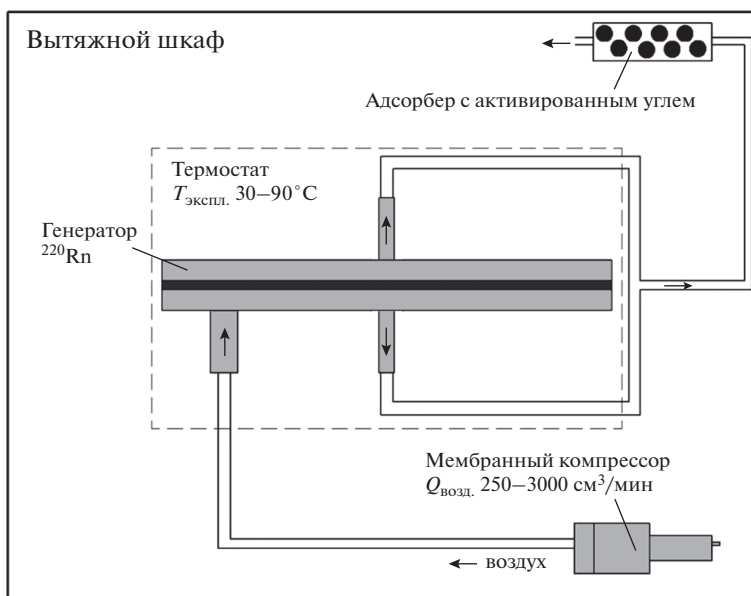


Рис. 3. Схема экспериментальной установки.

туры эксплуатации и расхода газа-носителя на эффективность эманирования  $^{220}\text{Rn}$  из генератора. Схема установки показана на рис. 3.

Типичный эксперимент проводили следующим образом. В генератор  $^{220}\text{Rn}$  устанавливали мембранное устройство и проводили сборку генератора. Контроль герметичности осуществляли при закрытых силиконовых трубках на штуцерах с помощью дозиметра-радиометра ДКС-96 с блоком детектирования БДЗА-96.

Собранный генератор  $^{220}\text{Rn}$  закрепляли в термостате, где устанавливалось определенное значение температуры и поддерживалось с точностью  $\pm 1^\circ\text{C}$ . К входному штуцеру подсоединяли подводящую силиконовую трубку внутренним диаметром 8 мм, которая соединялась с мембранным компрессором. Отводящие силиконовые трубки с внутренним диаметром 4 мм подсоединялись к верхнему и нижнему выходным штуце-

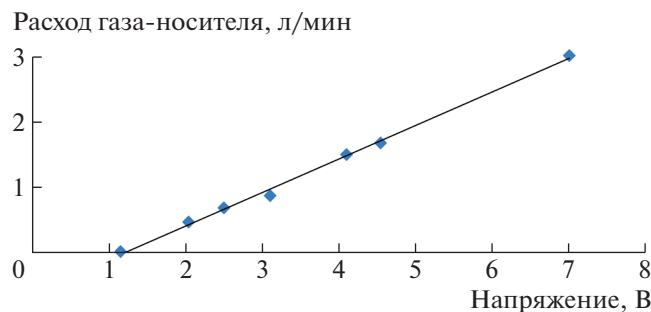


Рис. 4. Зависимость расхода газа-носителя от подаваемого напряжения.

рам генератора, соединялись через тройник и присоединялись к адсорберу с активированным углем для предотвращения попадания  $^{220}\text{Rn}$  и его ДПР в вытяжное устройство.

В качестве газа-носителя использовался атмосферный воздух естественной влажности. Продувка генератора воздухом осуществлялась с помощью мембранного компрессора. Расход воздуха задавали напряжением на компрессоре. Для этого была получена калибровочная кривая соответствия подаваемого напряжения и расхода газа-носителя, показанная на рис. 4. Калибровку проводили по ротаметру.

Уравнение  $Y = 0.516x - 0.621$  — аппроксимация экспериментальных данных рис. 4 с достоверностью 0.997.

Продолжительность каждого эксперимента составляла 36 ч и определялась оптимальным временем накопления целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$ . Время, при котором достигается максимальная активность  $^{212}\text{Pb}$  ( $t_{\text{max}}$ ), определяется законом радиоактивного распада и вычисляется по формуле

$$t_{\text{max}} = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)}{\lambda_1 - \lambda_2}, \quad (1)$$

где  $\lambda_1$  — постоянная распада  $^{224}\text{Ra}$ ,  $\lambda_2$  — постоянная распада  $^{212}\text{Pb}$ .

По окончании эксперимента от генератора  $^{220}\text{Rn}$  отсоединяли подводящую и отводящие трубки, генератор извлекали из термостата и осуществляли его разборку для проведения  $\gamma$ -спектрометрических измерений.

**Таблица 1.** Результаты экспериментов по определению выхода  $^{220}\text{Rn}$  в разных условиях (продолжительность продувки 36 ч)

$T, ^\circ\text{C}$	Расход, л/мин	Активность ( $^{212}\text{Pb}$ ), кБк				Выход $^{220}\text{Rn}$ , %
		Мембранное устройство 13	Кольцо 14	Верхний корпус 8	Нижний корпус 10	
30	3.0	39.0	0.16	0.16	0.16	67
55	0.4	23.6	0.10	0.31	0.31	80
55	0.4	24.6	0.16	0.41	0.37	79
55	0.7	25.7	0.10	0.33	0.51	78
55	1.0	23.1	0.15	0.39	0.21	80
55	1.2	24.2	0.09	0.28	0.09	80
55	3.5	25.7	0.16	0.17	0.12	78
70	3.0	20.0	0.33	0.86	0.56	83
90	3.0	11.0	0.26	0.49	0.30	90

Эффективность генерации  $^{220}\text{Rn}$  (степень эманирования) оценивали по активности целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 10.64$  ч). Измерения проводили полупроводниковым Ge-детектором, соединенным с многоканальным анализатором (ORTEC). Активность радионуклида  $^{212}\text{Pb}$  измеряли по интегралу фотопика  $\gamma$ -линии 238.63 кэВ. Выход  $^{220}\text{Rn}$  из генератора определялся как процентное отношение активности  $^{212}\text{Pb}$  на всех элементах генератора (8, 10, 13, 14 на рис. 2), контактирующих с  $^{220}\text{Rn}$ , после процесса к равновесной исходной активности герметично закрытого мембранного устройства. Для измерения равновесной исходной активности мембранного устройства оно выдерживалось в герметичном конверте из алюминиевой фольги в течение  $\sim 100$  ч для достижения равновесия.

Для контроля радионуклидной чистоты (РНЧ) целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$  периодически проводили отбор проб в виде смывов с внутренней поверхности генератора для проведения  $\alpha$ -спектрометрических измерений на  $\alpha$ -детекторе ORTEC ALPHA-DUO.

## ОБСУЖДЕНИЕ

Эффективность работы генератора – степень эманирования  $^{220}\text{Rn}$  – определяется несколькими взаимосвязанными процессами:

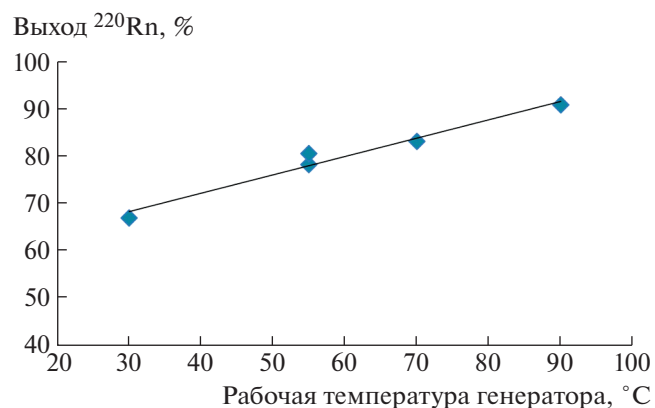
- диффузия  $^{220}\text{Rn}$  через несущую мембрану в пространство мембранного устройства;
- диффузия  $^{220}\text{Rn}$  через защитные мембраны в объем продуваемого пространства генератора;
- удаление  $^{220}\text{Rn}$  из объема продуваемого пространства потоком газа-носителя.

При обеспечении достаточных скоростей диффузии первых двух процессов эффектами от ядер-

но-физических процессов, которые могут влиять на выход  $^{220}\text{Rn}$ , можно пренебречь. Таким образом, эффективность эманирования  $^{220}\text{Rn}$  в основном будет зависеть от рабочей температуры генератора и расхода газа-носителя. В табл. 1 представлены результаты первой серии экспериментов с различным расходом газа-носителя при разной температуре.

Из табл. 1 видно, что выход  $^{220}\text{Rn}$  в большей степени зависит от температуры, поэтому была проведена серия экспериментов по изучению влияния рабочей температуры в интервале 30–90 $^\circ\text{C}$  на выход  $^{220}\text{Rn}$  из генератора. При этом расход газа-носителя поддерживался на заведомо большем значении – 3 л/мин. Результаты серии экспериментов представлены на рис. 5.

Влияние температуры на выход  $^{220}\text{Rn}$  объясняется возрастанием скорости диффузии радона как в материале несущей мембраны, так и в пространстве мембранного устройства, что приводит



**Рис. 5.** Влияние рабочей температуры на эффективность выхода  $^{220}\text{Rn}$ . Расход газа-носителя – 3 л/мин, продолжительность продувки генератора – 36 ч.

**Таблица 2.** Влияние расхода воздуха на выход  $^{220}\text{Rn}$  при температуре  $55^\circ\text{C}$ 

Расход воздуха, л/мин	Выход $^{220}\text{Rn}$ , %
0.25	78
0.5	80
0.5	79
0.7	79
1.0	78
1.2	80
3.0	79

к увеличению выхода  $^{220}\text{Rn}$  в объем продуваемого пространства генератора.

Влияние расхода газа-носителя на выход  $^{220}\text{Rn}$  изучали в серии экспериментов в среднем температурном диапазоне при  $55^\circ\text{C}$ . Результаты экспериментов представлены в табл. 2.

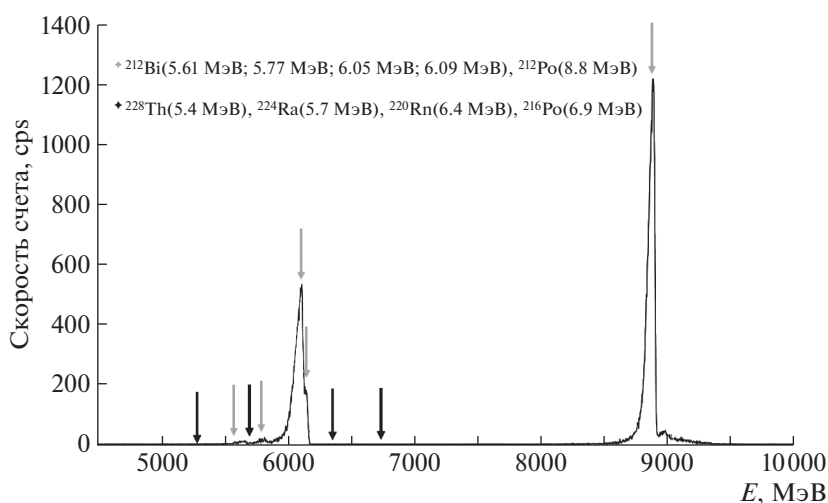
Из данных табл. 2 видно, что в диапазоне 0.25–3 л/мин расход газа-носителя не оказывает заметного влияния на выход  $^{220}\text{Rn}$ . Это свидетельствует об эффективной организации потока газа-носителя в продуваемом пространстве и его оптимальной геометрии. По-видимому, в данном прототипе возможно некоторое уменьшение расхода ниже величины 0.25 л/мин без значительных потерь в эффективности. Однако при создании генератора для терапевтических целей будет необходимо увеличивать диаметр мембранного устройства, что повлечет за собой увеличение объема продуваемого пространства. Поэтому расход газа-носителя 0.25 л/мин можно принять за некий исходный уровень величины потока газа-носителя.

Обобщая данные по влиянию рабочей температуры и расхода газа-носителя, можно сделать

вывод о том, что процессы, происходящие в мембранном устройстве и продуваемом пространстве, хоть и взаимосвязаны, но зависят от разных факторов. Наибольшие ограничения на эффективность эманирования  $^{220}\text{Rn}$  накладываются процессами диффузии в мембранном устройстве. При тестировании работы генератора  $^{220}\text{Rn}$  в качестве газа-носителя использовался воздух естественной влажности при атмосферном давлении. Применение легких газов-носителей, таких как водород или гелий, и понижение рабочего давления будут способствовать увеличению скорости диффузии  $^{220}\text{Rn}$  в мембранном устройстве и его выходу в объем продуваемого пространства. Это важные параметры, которые необходимо учитывать при разработке способа улавливания  $^{220}\text{Rn}$  и устройства накопления целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$  при функционировании генератора в замкнутом контуре.

Важнейшим показателем при производстве радиофармацевтических лекарственных препаратов является радионуклидная чистота получаемого нуклида. Для контроля РНЧ целевого радионуклида  $^{212}\text{Pb}$  периодически проводили смыв активности с внутренних поверхностей генератора  $^{220}\text{Rn}$ . На рис. 6 показан  $\alpha$ -спектр пробы смыва с внутренней поверхности генератора. В спектре отсутствуют линии, характерные для долгоживущих материнских радионуклидов  $^{228}\text{Th}$  и  $^{224}\text{Ra}$ .

Вопрос радиационной стойкости применяемых в генераторе материалов представляет особую важность. В первую очередь это относится к полимерным материалам мембранного устройства. Полимеры из-за своего молекулярного строения под действием радиации подвергаются деструкции, сопровождаемой уменьшением молекулярной массы, прочностю, повышением рас-

**Рис. 6.**  $\alpha$ -Спектр пробы смыва с внутренней поверхности генератора  $^{220}\text{Rn}$ .

творимости. Существует предел поглощенной дозы, после которой химические и физические свойства полимеров претерпевают существенные изменения. Была предпринята попытка оценить величину поглощенной дозы в несущей мембране — носителе материнского радионуклида — для определения рекомендуемого времени ее эксплуатации. Очевидно, что для минимизации этой дозы необходимо непрерывное удаление газообразного  $^{220}\text{Rn}$  от мембраны для предотвращения ее облучения ДПР. Поэтому для оценки следует рассчитать энергию, выделившуюся в несущей мембране от  $\alpha$ - и  $\gamma$ -излучения следующих радионуклидов (табл. 3).

Все перечисленные радионуклиды находятся в равновесии со своими родительскими, поскольку иммобилизованы; тогда поглощенная энергия от  $\alpha$ -излучения за 1 с будет вычисляться по формуле

$$Q = \sum_i A_i \cdot E_i \cdot p_i, \quad (2)$$

где  $A_i$  — активность  $i$ -го радионуклида,  $E_i$  — энергия его  $\alpha$ -частицы,  $p_i$  — коэффициент ветвления. Поскольку активность распределена равномерно по объему несущей мембраны, будем считать, что вся энергия  $\alpha$ -частиц выделяется в материале, чтобы получить верхнюю оценку по мощности дозы. Для указанной выше толщины мембраны ни одна из разновидностей  $\alpha$ -частиц не успевает покинуть ее пределы прежде выделения всей кинетической энергии.

Ввиду отсутствия расчетных формул для дозовых полей внутри фотонного источника тонкий источник можно заменить на сферу с радиусом, равным среднему пробегу фотонов через толщину мембраны. Для указанной геометрии расчет среднего пробега через мембрану по формуле вычисления среднего значения приводит к величине пробега 532 мкм. Тогда поглощенную энергию  $\gamma$ -излучения получаем по формуле

$$E = \sum_k E_k \cdot \eta_k \cdot A_k (1 - e^{-\mu l}) \cdot \frac{1}{2}, \quad (3)$$

где  $A_k$  — активность  $k$ -го радионуклида,  $E_k$  — энергия его  $\gamma$ -кванта,  $\eta_k$  — квантовый выход,  $\mu$  — линейный коэффициент ослабления,  $l$  — радиус сферы. Коэффициент 0.5 приближенно соответствует доле частиц, которые удаляются во внешнюю сторону от поверхности мембраны. При указанных условиях доза от  $\gamma$ -излучения, как показывают расчеты по формуле (3), на 2 порядка ниже, чем доза от  $\alpha$ -излучения, поэтому далее оно учитываться не будет.

Согласно табл. 3 с основными энергиями  $\alpha$ -частиц, для оценки примем величину наносимой активности  $^{228}\text{Th}$  в 10 МБк. Поверхностная плотность мембраны составляет 8.8 мг/см<sup>2</sup>. При диаметре несущей мембраны 20 мм мощность дозы  $\alpha$ -

**Таблица 3.** Характеристики радионуклидов

$^{228}\text{Th}$	Энергия $\alpha$ -частицы, МэВ	Ветвление, %
	5.3	100
$^{224}\text{Ra}$	Энергия $\gamma$ -кванта, кэВ	Квантовый выход, %
	84	84
$^{224}\text{Ra}$	Энергия $\alpha$ -частицы, МэВ	Ветвление, %
	5.7	94
$^{224}\text{Ra}$	Энергия $\gamma$ -кванта, кэВ	Квантовый выход, %
	240	4.1

излучения в мембране при такой активности составляет 0.6 Гр/с, что при пороге дозы в 1–2 МГр дает оценку срока службы мембраны в 40 сут. Однако преимуществом мембранного исполнения источника является возможность уменьшения активности, приходящейся на единицу площади мембраны, что влечет за собой уменьшение дозовой нагрузки на источник. Так, при увеличении диаметра мембраны с 20 до 100 мм мощность дозы в мембране уменьшается в 25 раз, что увеличивает ее срок службы при одной и той же активности до трех лет.

Что касается радиационной стойкости защитных мембран, то воздействие  $\alpha$ -излучения от материнских радионуклидов на материал мембраны будет гораздо слабее, нежели на материал несущей мембраны. Результаты исследований [9, 10] показывают, что под воздействием малых и больших доз облучения разные марки пористых фторопластов испытывают изменения различного характера — от разрушения до упрочнения. Изменения затрагивают как физико-механические, так и фильтровальные характеристики пористых фторполимеров. Условия эксплуатации защитных мембран таковы, что они в процессе работы практически не испытывают механических нагрузок, так как поток газа-носителя только обдувает наружную поверхность мембраны, при этом требуется сохранение фильтрующих свойств материала.

Расчеты радиационной стойкости носят оценочный характер и не могут предоставить точный прогноз по срокам эксплуатации мембранного устройства при условии сохранения требуемых характеристик и эффективности выхода  $^{220}\text{Rn}$ . На тестовой активности представленный прототип генератора функционирует около двух лет, при этом не отмечено снижения эффективности выхода  $^{220}\text{Rn}$  и загрязнения целевого  $^{212}\text{Pb}$  материнскими радионуклидами  $^{228}\text{Th}$  и  $^{224}\text{Ra}$ . Для получения достоверных экспериментальных данных необходимо проведение испытаний материалов мембранного устройства в условиях эксплуатации,

моделирующих работу радионуклидного генератора  $^{212}\text{Pb}$  для терапевтических целей.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Создан прототип генератора газообразного радионуклида  $^{220}\text{Rn}$  для производства радионуклида  $^{212}\text{Pb}$  эманационным методом. Сборная конструкция мембранного устройства и корпуса генератора подразумевает использование доступных материалов и относительно несложного процесса изготовления основных элементов устройства. Технологический процесс подготовки генератора к работе может быть автоматизирован и приспособлен к условиям работы в защитных боксах, при этом продолжительность ручных операций с активностью сведена к минимуму.

Целевой радионуклид  $^{212}\text{Pb}$ , полученный в результате работы генератора, обладает высокой радионуклидной чистотой. Высокая эффективность эманирования  $^{220}\text{Rn}$  (не менее 90%) при малом расходе газа-носителя является важной предпосылкой для проектирования компактного накопителя целевого  $^{212}\text{Pb}$  и создания полнофункционального генератора терапевтического радионуклида  $^{212}\text{Pb}$ .

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kokov K.V., Egorova B.V., German M.N. et al.* // *Pharmaceutics*. 2022. V. 14. P. 189. <https://doi.org/10.3390/pharmaceutics14010189>
2. *Radchenko V., Morgenstern A., Jalilian A.R. et al.* // *J. Nucl. Med.* 2021. V. 62 (11). P. 1495. <https://doi.org/10.2967/jnumed.120.261016>
3. *Atcher R.W., Friedman A.M., Hines J.J.* // *Int. J. Radiat. Appl. Instrum. A*. 1988. V. 39. P. 283. [https://doi.org/10.1016/0883-2889\(88\)90016-0](https://doi.org/10.1016/0883-2889(88)90016-0)
4. *Чувлин Д.Ю., Артюхов А.А., Кузнецова Т.М. и др.* Способ получения радионуклида Pb-212 и устройство для его осуществления. Пат. RU2784484C1 (Россия). 2022.
5. *Hassfjell S.P., Hoff P.* // *Appl. Radiat. Isot.* 1994. V. 45. P. 1021. [https://doi.org/10.1016/0969-8043\(94\)90170-8](https://doi.org/10.1016/0969-8043(94)90170-8)
6. *Hassfjell S.P.* // *Appl. Radiat. Isot.* 2001. V. 55. P. 433. [https://doi.org/10.1016/s0969-8043\(00\)00372-9](https://doi.org/10.1016/s0969-8043(00)00372-9)
7. *Wrasidlo W., Mysels K.J.* // *Colloids Surf. A*. 2001. V. 186 (1–2). P. 123. [https://doi.org/10.1016/S0927-7757\(00\)00768-8](https://doi.org/10.1016/S0927-7757(00)00768-8)
8. *Артюхов А.А., Ивлиев П.Н., Коков К.В. и др.* // *Журн. физ. химии*. 2022. Т. 96. № 8. С. 1211.
9. *Чарлзби А.* Ядерные излучения и полимеры. М.: Издатинлит, 1962.
10. *Махлис Ф.А.* Радиационная физика и химия полимеров. М.: Атомиздат, 1972.