

ТЕХНИКА ЯДЕРНОГО
ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 539.172.16

ГАЗОВАЯ МИШЕНЬ ДЛЯ ПРОИЗВОДСТВА ^{82}Sr
ПО РЕАКЦИИ $^{80}\text{Kr}(^4\text{He}, 2n)^{82}\text{Sr}$ НА ЦИКЛОТРОНЕ У-150 НИЦ
“КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ”

© 2019 г. В. А. Загрядский^{а,*}, С. Т. Латушкин^а, Т. Ю. Маламут^а,
В. И. Новиков^а, А. А. Оглоблин^а, В. Н. Унежев^а, Д. Ю. Чувилин^а

^а Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”
Россия, 123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1

*e-mail: zagryadskiy_va@mail.ru

Поступила в редакцию 25.01.2019 г.

После доработки 25.01.2019 г.

Принята к публикации 11.02.2019 г.

Изложена концепция каскадной газовой мишени с изотопами криптона, предназначенной для получения радиоизотопа ^{82}Sr медицинского назначения. В рамках реализации данной концепции на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” создана экспериментальная установка, позволяющая на базе модуля мишени с изотопом ^{80}Kr нарабатывать ^{82}Sr по реакции $^{80}\text{Kr}(^4\text{He}, 2n)^{82}\text{Sr}$ с выходом $^{82}\text{Sr} \sim 53$ мкКи/мкА·ч. Дано описание установки и изложен порядок ее работы. Установка продемонстрировала устойчивый характер работы с воспроизведением результатов. Отмечается, что нарабатываемый на установке радиоизотоп ^{82}Sr не имеет примеси радиоизотопа ^{85}Sr , ответственного примерно за половину дозовой нагрузки на персонал при эксплуатации стандартных ^{82}Sr – ^{82}Rb -изотопных генераторов.

DOI: 10.1134/S0032816219040360

В настоящее время одним из наиболее перспективных и динамично развивающихся направлений ядерной медицины является диагностика на основе метода позитронно-эмиссионной томографии (п.э.т.). Для диагностики миокарда методом п.э.т. наиболее приемлемым радиоактивным индикатором признан радиоизотоп ^{82}Rb , получаемый с помощью ^{82}Sr – ^{82}Rb -изотопных генераторов. Наиболее широко эта технология используется сегодня в США. Радиоизотоп ^{82}Sr , как правило, получают на ускорителях протонов с энергией ≥ 70 МэВ по реакции $\text{Rb}(p, xn)^{82}\text{Sr}$ [1–3]. Ускорители с соответствующими характеристиками, ориентированные на коммерческое производство радиоизотопов, могут появиться в нашей стране лишь через несколько лет. Вместе с тем, для создания конкурентной среды в продвижении указанной технологии в России на основе отечественных ^{82}Sr – ^{82}Rb -изотопных генераторов необходимо, чтобы уже сегодня потенциальные независимые производители генераторов имели возможность оперативного использования ^{82}Sr как в процессе разработки генераторов, так и в процессе их испытаний. Однако из-за дефицита в настоящее время в нашей стране соответствующих протонных ускорителей возможности получения ^{82}Sr для указанных целей потенциальными

производителями ^{82}Sr – ^{82}Rb -изотопных генераторов весьма ограничены.

Для решения этой проблемы в НИЦ “Курчатовский институт” были проведены исследования по разработке иных доступных способов получения ^{82}Sr для указанных целей. В частности, рассматривалась возможность производства ^{82}Sr на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” путем облучения ядрами ^4He и ^3He газовой криптоновой мишени. Первые эксперименты, направленные на получение ^{82}Sr по реакциям $\text{Kr}(^4\text{He}, xn)^{82}\text{Sr}$ и $\text{Kr}(^3\text{He}, xn)^{82}\text{Sr}$, были выполнены

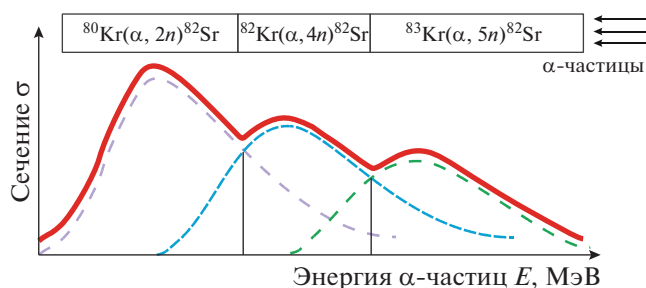


Рис. 1. Иллюстрация принципа работы каскадной мишени.

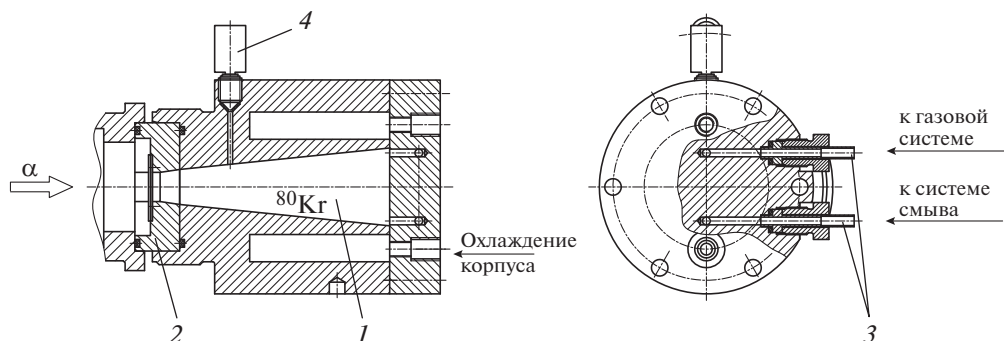


Рис. 2. Конструкция модуля каскадной мишени с ^{80}Kr . 1 – рабочая камера; 2 – фольговый узел; 3 – технологические отверстия; 4 – тензометрический датчик давления.

с использованием природного криптона в работах [4, 5]. Выходы ^{82}Sr , полученные в [5] по указанным реакциям для энергии ^4He и ^3He , сопоставимой с возможностями циклотрона У-150, составили соответственно ~ 5 и ~ 15 мкКи/мкА · ч, что недостаточно для практического применения.

С целью увеличения выхода ^{82}Sr авторами предложен метод, основанный на использовании каскадной мишени [6]. Кратко суть метода состоит в следующем. Каскадная мишень представляет собой ряд модулей (замкнутых объемов) с высокообогащенными изотопами криптона, которые заряженная частица последовательно (начиная с изотопа с большей массой) пролетает до полного торможения. При этом размеры модулей и, соответственно, границы между модулями выбираются так, чтобы каждый изотоп криптона облучался ядрами ^4He лишь в той энергетической области заряженных частиц, где сечение реакции с выходом ^{82}Sr выше соответствующих сечений реакций на других изотопах криптона. Это дает возможность существенно увеличить интегральный выход ^{82}Sr . На рис. 1 схематично проиллюстрирован принцип работы каскадной мишени. Здесь кривые представляют условные сечения реакций, приводящие к образованию ^{82}Sr на различных изотопах криптона, а огибающая кривая – эффективное сечение образования ^{82}Sr в каскадной мишени.

В рамках реализации концепции каскадной мишени и для отработки технологии получения и выделения ^{82}Sr из газообразной мишени в НИЦ “Курчатовский институт” на циклотроне У-150 создана экспериментальная установка, позволяющая нарабатывать ^{82}Sr на одном из модулей мишени с высокообогащенным изотопом криптона ^{80}Kr по реакции $^{80}\text{Kr}(^4\text{He}, 2n)^{82}\text{Sr}$. Получаемый на этой установке ^{82}Sr не имеет, в отличие от ^{82}Sr , получаемого по реакции $\text{Rb}(p, xn)^{82}\text{Sr}$, примеси ^{85}Sr , ответственного примерно за половину дозовой нагрузки на персонал. Это особенно удобно при

проведении исследовательских работ по отладке режимов работы ^{82}Sr – ^{82}Rb -изотопных генераторов и при проведении их испытаний.

На рис. 2 приведена в общем виде конструкция модуля каскадной мишени с ^{80}Kr .

Модуль состоит из металлического корпуса с внутренней конусообразной рабочей камерой 1 и фольгового узла 2, отделяющего модуль от объема циклотрона. Корпус охлаждается проточной водой. Объем рабочей камеры (~ 100 см³) через специальные технологические отверстия 3 связан с автономной вакуумной системой, системой подачи и удаления криптона, устройством, обеспечивающим смыв ^{82}Sr со стенок рабочей камеры. Давление газа в рабочей камере контролировали с помощью тензометрического датчика 4. Геометрические размеры рабочей камеры были выбраны на основе расчетов по программе SRIM [7] и обеспечивали длину пробега ядер ^4He в ^{80}Kr при давлении ~ 0.65 МПа от начальной энергии 55 МэВ до 35 МэВ (эффективного порога реакции $^{80}\text{Kr}(^4\text{He}, 2n)^{82}\text{Sr}$).

На рис. 3 приведена блок-схема экспериментальной установки для производства ^{82}Sr по реакции $^{80}\text{Kr}(^4\text{He}, 2n)^{82}\text{Sr}$. Работы на установке осуществлялись в следующей последовательности: вакуумирование рабочей камеры 1 модуля, ее заполнение изотопом ^{80}Kr (использовался ^{80}Kr с обогащением $\geq 99.9\%$), облучение модуля ядрами ^4He с энергией 55 МэВ, вымораживание изотопа ^{80}Kr после облучения из рабочей камеры модуля в баллон с ^{80}Kr (5), извлечение из модуля ^{82}Sr , образующегося в результате облучения. В режиме online под управлением компьютера на всех этапах технологического процесса осуществлялся контроль основных физических параметров установки. Вакуумирование рабочей камеры модуля проводили с помощью форвакуумного насоса Scroll Meister ISP-50 (4) до давления 10^{-3} Торр при открытых клапанах V_1 , V_3 и закрытых клапанах V_2 , V_4 , V_5 . Заполнение криптоном рабочей камеры

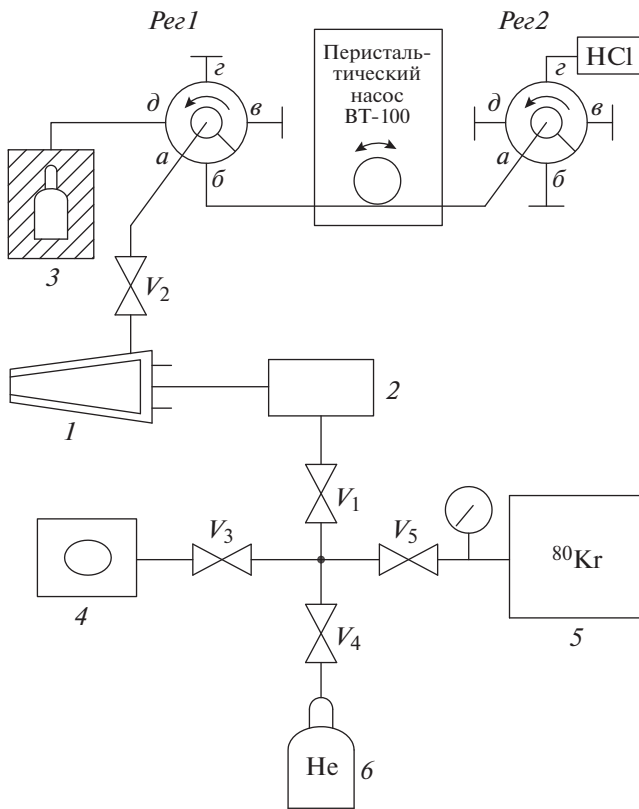


Рис. 3. Блок-схема экспериментальной установки для производства ^{82}Sr по реакции $^{80}\text{Kr}(^4\text{He}, 2n)^{82}\text{Sr}$. 1 – рабочая камера; 2 – промежуточная азотная ловушка; 3 – емкость сбора раствора со ^{82}Sr в защитном контейнере; 4 – форвакуумный насос; 5 – баллон с ^{80}Kr ; 6 – баллон с He; 7 – тензометрический датчик давления; V_1 – V_5 – электромагнитные клапаны, $Peg1$, $Peg2$ – вентили-переключатели.

модуля осуществляли в следующей последовательности. При открытых V_1 , V_5 и закрытых клапанах V_2 – V_4 из баллона с ^{80}Kr (5) известного объема, контролируя давление газа по тензометрическому датчику 7, перемораживали часть ^{80}Kr , необходимую для заполнения рабочей камеры 1 модуля, во вспомогательную азотную ловушку 2. Затем при закрытых клапанах V_1 , V_2 заполняли ^{80}Kr рабочую камеру модуля до давления ~ 0.65 МПа, отогревая вспомогательную азотную ловушку 2 до комнатной температуры. Облучение модуля проводили двухзарядными ядрами ^4He с начальной энергией 55 МэВ при токе ~ 10 мкА в течение часа, контролируя давление газа в рабочей камере по тензометрическому датчику 4 (рис. 2). Давление криптона в рабочей камере поднималось с ~ 0.65 до ~ 0.85 МПа в течение первых 10 с облучения и в дальнейшем не менялось. Интегральный поток ядер ^4He определяли с помощью специального интегрирующего прибора измерением суммарного заряда ядер ^4He , падающих на модуль.

Во время облучения ^{80}Kr на стенках рабочей камеры оседал ^{82}Sr . После облучения ^{80}Kr из рабочей камеры при открытых клапанах V_1 , V_5 (рис. 3) и закрытых V_2 – V_4 перемораживали в баллон с ^{80}Kr (5). Извлечение ^{82}Sr из рабочей камеры модуля проводили путем смыва радионуклида со стенок 0.5 М раствором HCl. В результате смыва ^{82}Sr взаимодействовал с HCl и находился в растворе в форме SrCl_2 . Процедуру смыва проводили следующим образом. При открытом клапане V_2 и закрытом V_1 объем рабочей камеры 1 заполняли раствором HCl из емкости (на рис. 3 не показана), при помощи перистальтического насоса VT-100 через вентили-переключатели $Peg1$ и $Peg2$, установленные в положение z ($Peg2$) и положение $б$ ($Peg1$). При заполнении объема рабочей камеры раствором HCl до давления $P = 0.012$ МПа клапан V_2 закрывался.

После 30 мин выдержки при открытых клапанах V_1 , V_2 , V_4 и закрытых V_3 , V_5 и переведенном в положение $д$ вентили-переключателя $Peg1$ раствор из рабочей камеры выдавливался газообразным гелием, подаваемым из баллона 6, в емкость сбора раствора со ^{82}Sr (3), установленную внутри защитного свинцового контейнера. Однократный смыв позволял смыть $\sim 90\%$ активности ^{82}Sr . Повторные смывы суммарно добавляли $\sim 10\%$ активности по отношению к первичному смыву. Через 7 дней выдержки из емкости со ^{82}Sr отбирали образец раствора объемом 1 мл и проводили измерения активности ^{82}Sr и активностей сопутствующих радиоизотопных примесей. Поскольку ^{82}Sr не имеет удобных для регистрации γ -линий, активность ^{82}Sr ($T_{1/2} = 25.35$ дня) определяли по активности дочернего радиоизотопа ^{82}Rb ($T_{1/2} = 1.26$ мин), с которым ^{82}Sr находился в равновесии. Активность ^{82}Rb определяли по площади пика полного поглощения γ -линии с $E_\gamma = 776.5$ кэВ, имеющей квантовый выход $K_\gamma = 15.08\%$ [8]. Измерения активности проводили с помощью γ -спектрометра фирмы ORTEC. Энергетическую зависимость эффективности регистрации γ -квантов детектором определяли экспериментально с помощью образцовых спектрометрических γ -источников из комплекта ОСГИ.

На рис. 4 в качестве иллюстрации приведен фрагмент аппаратного γ -спектра образца раствора со ^{82}Sr . В аппаратном спектре были идентифицированы γ -линии ^{82}Rb и ^{83}Rb ($T_{1/2} = 86.2$ дня), а также фоновые линии ^{208}Tl и ^{214}Bi . Выход ^{82}Sr в газовой криптоновой мишени с изотопом ^{80}Kr при начальной энергии ядер ^4He 55 МэВ составил $\sim 53 \pm 10$ мкКи/мкА·ч при доверительной вероятности 68%.

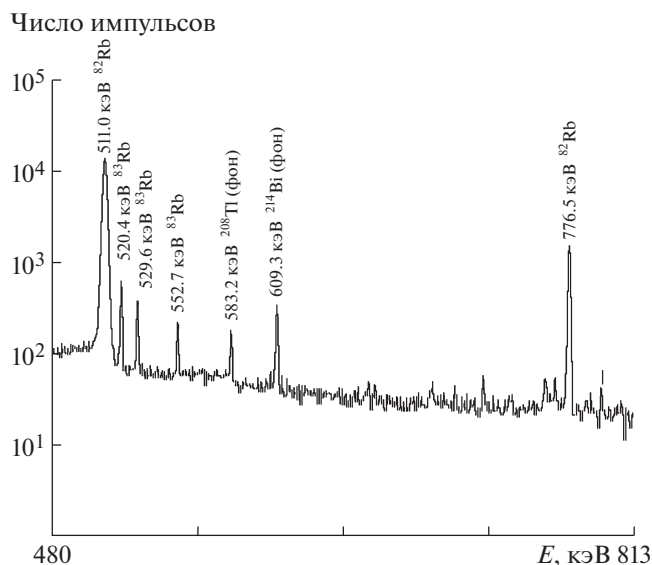


Рис. 4. Фрагмент аппаратного γ -спектра образца раствора со ^{82}Sr .

Выводы. На циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” в рамках реализации концепции каскадной мишени создана экспериментальная установка, позволяющая на базе модуля мишени с изотопом ^{80}Kr нарабатывать ^{82}Sr по реакции $^{80}\text{Kr}(^4\text{He}, 2n)^{82}\text{Sr}$ с приемлемым для практического использования выходом. В ходе нескольких пусков установка продемонстрировала устойчивый характер работы с воспроизведением результатов.

Нарабатываемый на установке радиоизотоп ^{82}Sr не имеет примеси радиоизотопа ^{85}Sr , ответственного примерно за половину дозовой нагрузки на персонал при эксплуатации стандартных ^{82}Sr – ^{82}Rb -изотопных генераторов.

Производительность созданной экспериментальной установки позволяет удовлетворить потребности разработчиков в оперативном использовании ^{82}Sr как на этапе разработки ^{82}Sr – ^{82}Rb -изотопных генераторов, так и в процессе их испытаний.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Mausner L., Prach T., Srivastava S.* // Appl. Radiation and Isotopes. 1987. V. 38. № 3. P. 181.
2. *Vereshchagin Yu.I., Zagryadskiy V.A., Prusakov V.N.* // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. 1993. V. A334. P. 246.
3. *Жуйков Б.Л., Коханюк В.М., Глушенко В.Н., Пилипенко С.И., Кавхута Г.А., Винцент Д., Кэкетт М.* // Радиохимия. 1994. Т. 36. С. 494.
4. *Tarkanyi F., Qaim S.M., Stocklin G.* // Appl Radiation and Isotopes. 1988. V. 39. № 2. P. 135.
5. *Tarkanyi F., Qaim S.M., Stocklin G.* // Appl. Radiation and Isotopes. 1990. V. 41. № 1. P. 91.
6. *Загрядский В.А., Латушкин С.Т., Новиков В.И., Оглоблин А.А., Унежеев В.Н., Чувилин Д.Ю., Шатров А.В., Ярцев Д.И.* // Атомная энергия. 2011. Т. 110. Вып. 2. С. 88.
7. *Ziegler J., Ziegler M., Biersack J.* // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Res. B. 2010. V. 268. P. 1818.
8. *Tuli J.K.* // Nuclear Data Sheets. 2003. V. 98. Issue 2. P. 209.