

ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ

УДК 621.039.34

ЛАБОРАТОРНАЯ УСТАНОВКА ДЛЯ ХРОМАТОГРАФИЧЕСКОГО
ВЫДЕЛЕНИЯ ^{186}Re БЕЗ НОСИТЕЛЯ ИЗ ОБЛУЧЕННЫХ
МИШЕНЕЙ ИЗ ВОЛЬФРАМА

© 2022 г. Е. Б. Фуркина^{а,*}, А. В. Курочкин^а, Р. А. Алиев^а, В. А. Загрядский^а,
Т. Ю. Маламут^а, В. И. Новиков^а, В. Н. Унежев^а

^а НИЦ “Курчатовский институт”

Россия, 123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1

*e-mail: furkina-k@yandex.ru

Поступила в редакцию 29.11.2021 г.

После доработки 09.12.2021 г.

Принята к публикации 10.12.2021 г.

Разработана лабораторная установка для выделения радиоизотопов рения из облученной вольфрамовой мишени с помощью экстракционной хроматографии. Работа установки протестирована с помощью мишени из металлического вольфрама естественного изотопного состава, облученной дейтронами на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт”. Показана возможность полного отделения рения от больших количеств (сотни миллиграмм) вольфрама. При разделении рений концентрируется в минимальном объеме (5 мл) итогового раствора, обеспечивая высокую удельную активность, необходимую для дальнейших экспериментов по созданию радиофармпрепарата.

DOI: 10.31857/S0032816222030016

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в мире активно ведутся разработки радиофармпрепаратов (РФП) на основе ^{186}Re [1–3]. Радионуклид ^{186}Re без носителя может быть получен на циклотроне по реакциям $^{186}\text{W}(p, n)^{186}\text{Re}$ [4, 5] и $^{186}\text{W}(d, 2n)^{186}\text{Re}$ [6, 7]. Процесс выделения рения из облученной вольфрамовой мишени можно осуществить различными способами: экстрагировать в виде ReO_4^- из раствора мишени кислородсодержащими экстрагентами, например метилэтилкетонем [8], или использовать термический метод сухой отгонки [9]. Однако, в основном, для разделения применяют хроматографические методы с использованием оксида алюминия или анионообменных смол в качестве неподвижной фазы [10]. На практике для терапии онкологических заболеваний применяют РФП с активностью $^{186}\text{Re} \sim 100$ МБк. Для наработки такой активности ^{186}Re используют циклотронные мишени с массой ^{186}W несколько сотен миллиграмм. В технологическом процессе переработки высокоактивных циклотронных мишеней с целью минимизации радиологического воздействия на персонал применяют локальные средства автоматизации.

Настоящая статья посвящена разработке и тестированию лабораторной установки для хро-

мографического выделения ^{186}Re из облученных вольфрамовых мишеней. Приведена схема установки, изложен принцип и последовательность ее работы. Проведено тестирование работы установки в ходе эксперимента по масштабированию и автоматизации разработанной авторами хроматографической методики выделения рения из облученной вольфрамовой мишени. Показано, что с помощью разработанной установки можно в рамках одной технологической операции полностью извлекать рений из вольфрамовой мишени массой несколько сотен миллиграмм. Подобраны оптимальные условия элюирования и необходимые объемы растворов для данной установки. Конструкция созданной установки позволяет проводить разделение в защитном боксе с использованием дистанционного управления, что существенно снижает радиологическое воздействие на персонал.

СХЕМА УСТАНОВКИ

Принципиальная схема установки представлена на рис. 1. Установка состоит из четырех подающих 1–4 и четырех приемных 5–8 емкостей из полипропилена с химическими реагентами, хроматографической колонки К из полипропилена сечением 0.65 см², перистальтического насоса РР

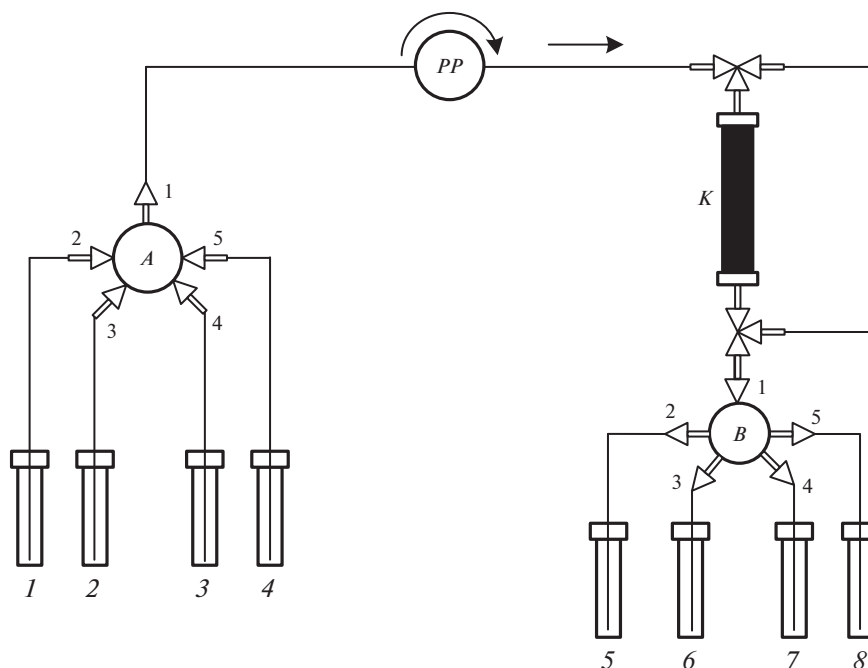


Рис. 1. Схема установки для выделения рения из раствора облученной вольфрамовой мишени. *A, B* – пятиходовые клапаны-переключатели; *K* – экстракционная колонка с трехходовыми кранами и байпасной трубкой для удаления воздуха; *PP* – перистальтический насос. *1–4* – емкости для подачи к клапану *A*: рабочего раствора после растворения *W-Re* в 3М NaOH, затем – 3М NaOH для элюирования (*1*), дистиллированной воды (*2*), 4М HNO₃ (*3*), 8М HNO₃ (*4*); *5–8* – емкости для подачи от клапана *B*: элюата нанесения с основной массой вольфрама (*5*), элюата промывки водой (*6*), фракции с рением (*7*), сброса отходов (*8*).

компании LongerPump BT100-2J с головкой YZ1515X и двух пятиходовых клапанов-переключателей *A* и *B* компании Swagelok SS-43ZFS2 с электрическим приводом Swagelok MS-142DCZE. Клапаны изготовлены из нержавеющей стали марки 316 с фторопластовыми уплотнениями. Управление клапанами осуществляется дистанционно.

Установка размещена в защитном вытяжном шкафу. Хроматографическая колонка объемом 1 мл заполнена экстракционно-хроматографической смолой TEVA Resin (TE-B25-A 100–150 мкм) компании Трискем. Смола TEVA представляет собой алифатический четвертичный амин Aliquat 336, нанесенный на полимерную смолу Amberchrom CG-71. Смолу в колонке удерживал фильтр из стекловолкна. Расчетная скорость потока растворов через насос составляла 1 мл/мин. При создании установки были рассчитаны объемы подводящих и отводящих трубок. Эти объемы учитывались при проведении разделения и при расчете требуемых объемов каждого элюента. До и после колонки установлены трехходовые краны с байпасной линией для удаления воздуха из коммуникаций перед началом работы.

РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕСТИРОВАНИЯ РАБОТЫ УСТАНОВКИ

Для тестирования работы установки использован порошок металлического вольфрама природного изотопного состава, облученный на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт” дейтронами с энергией 28 МэВ. Мишень облучали до достижения интегрального заряда 0.1 мкА · ч. В качестве индикаторов наличия в растворах вольфрама и рения использовали наработанные в вольфраме радиоизотопы ¹⁸⁷W ($T_{1/2} = 23.9$ ч) и ¹⁸¹Re ($T_{1/2} = 20$ ч). Активности ¹⁸⁷W и ¹⁸¹Re определяли на γ -спектрометре фирмы ORTEC с детектором из сверхчистого германия: активность ¹⁸⁷W – по γ -линии с $E_\gamma = 686$ кэВ, а активность ¹⁸¹Re – по γ -линии с $E_\gamma = 366$ кэВ. К извлеченному из облученной мишени порошку металлического вольфрама массой 153 мг осторожно, по каплям, добавляли 1200 мкл 60%-го раствора H₂O₂ при нагревании до 80°C. В связи с тем, что раствор очень сильно пенится, растворение проводили в стакане большого (100 мл) объема. После окончания реакции и растворения вольфрама к получившемуся раствору осторожно, по каплям, добавляли 1800 мкл 6 М NaOH. При добавлении щелочи раствор окрашивался в желтый цвет, затем становился прозрачным. При растворении еще больших

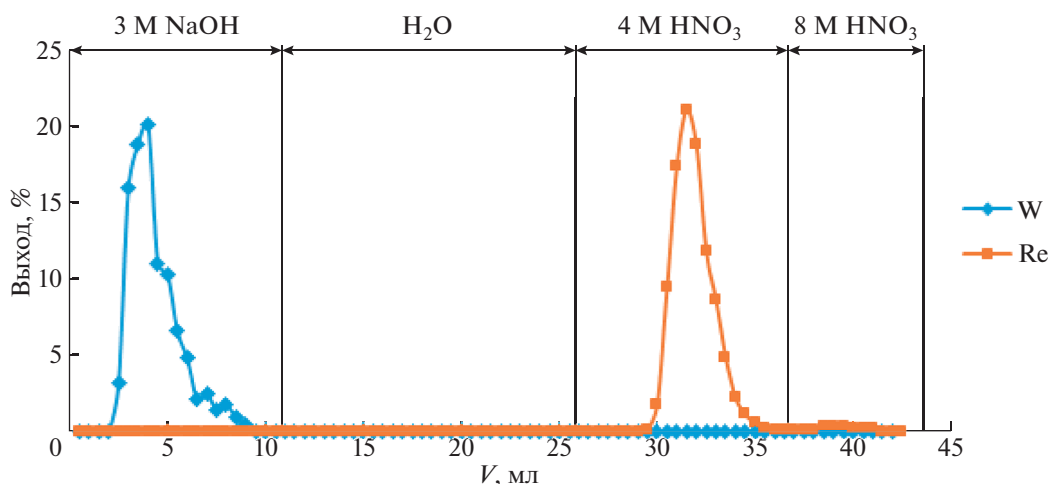


Рис. 2. Результаты элюирования вольфрама и рения в процессе автоматизированной переработки облученной вольфрамовой мишени.

количество вольфрама после добавления перекиси возможно образование белого осадка, который растворялся после добавления щелочи. Далее раствор выдерживали до полного разложения щелочи и прекращения газообразования, так как пузырьки газа при попадании в колонку замедляют процесс разделения. Выдержка занимала около 1 ч.

Полученный раствор перерабатывали на созданной установке.

Перед началом работы на установке освобождали трассы от воздуха, заполняя их раствором 3 М щелочи минуя колонку. Колонку подготавливали, промывая ее раствором 3 М щелочи (2–3 колоночных объема).

При пропуске рабочего раствора через колонку рений сорбировался на колонке, а вольфрам проходил через нее. Элюировали вольфрам раствором 3 М NaOH до полного удаления его с колонки. Содержание вольфрама в элюате контролировали с помощью γ -спектрометрии. Затем удаляли щелочь, пропуская дистиллированную воду через трассы и колонку. Контроль удаления щелочи осуществляли измерением pH раствора с помощью индикаторной бумаги. Элюировали рений раствором 4 М HNO₃. Содержание рения в элюате контролировали с помощью γ -спектрометрии. Затем для полной очистки сорбента колонку промывали сначала раствором 8 М HNO₃, после чего — дистиллированной водой и консервировали до следующего эксперимента.

Гамма-спектры от образцов элюата измеряли в одной и той же геометрии по отношению к детектору. Все γ -спектры были проанализированы на наличие характерных γ -линий вольфрама и рения. При обнаружении соответствующих γ -линий в образцах элюата были проведены расчеты активности искомых радионуклидов.

По результатам измерений построены кривые элюирования вольфрама и рения, представленные на рис. 2. По горизонтальной оси на рис. 2 указаны объемы пропущенных через экстракционную колонку растворов: 0–11 мл для раствора 3 М NaOH, 12–26 мл для дистиллированной воды при смене среды, 27–37 мл для раствора 4 М HNO₃ и 38–43 мл для раствора 8 М HNO₃. Вертикальная шкала соответствует относительному выходу радионуклида — отношению активности радионуклида в отдельной пробе к суммарной активности радионуклида в границах пика элюирования.

Согласно рис. 2, на созданной лабораторной установке удалось достичь полного разделения вольфрама и рения: γ -линий рения не обнаружено в спектре вольфрамового элюата, соответственно γ -линий вольфрама не обнаружено в спектрах рениевых образцов. Весь вольфрам выходит в первых десяти миллилитрах элюата, основная часть рения выходит в пяти миллилитрах (с 30 по 35 мл) элюата. Ширина пика выхода вольфрама зависит от исходного объема раствора, направляемого на экстракционную колонку. Чем меньше будет объем раствора, тем в меньшем объеме будет выходить вольфрам. Ширина пика выхода рения не зависит от объема исходного раствора. Она обусловлена исключительно коэффициентом удерживания рения на сорбенте в данной среде. Можно предположить, что, даже при значительно больших активностях рения (вплоть до единиц кюри), весь рений будет элюироваться в данном минимальном объеме.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Разработана, изготовлена и протестирована автоматизированная лабораторная установка для

хроматографического выделения ^{186}Re без носителя из облученных вольфрамовых мишеней.

2. Подобраны оптимальные режимы элюирования и необходимые объемы растворов для данной установки.

3. Показано, что с помощью разработанной установки можно в рамках одной технологической операции полностью извлекать рений из вольфрамовой мишени с массой несколько сотен миллиграмм.

4. Общее время переработки мишени на созданной лабораторной установке, включая время растворения и время выдержки после растворения, не превышает двух часов.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт”, приказ № 2751 от 28.10.2021.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Lam M.G., de Klerk J.M., van Rijk P.P.* // European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging. 2004. V. 31. № S1. P. S162.
<https://doi.org/10.1007/s00259-004-1539-4>
2. *Knut L.* // World Journal of Nuclear Medicine. 2015. V. 14. P. 10.
<https://doi.org/10.4103/1450-1147.150509>
3. *Kinuya S., Yokoyama K., Izumo M., Sorita T., Obata T., Mori H., Shiba K., Watanabe N., Shuke N., Michigishi T., Tonami N.* // Cancer Letters. 2005. V. 219. P. 41.
<https://doi.org/10.1016/j.canlet.2004.08.033>
4. *Khandaker M.U., Uddin M.S., Kim K., Lee M.W., Kim K.S., Lee Y.S., Kim G.N., Cho Y.S., Lee Y.O.* // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Research B. 2008. V. 266. P. 1021.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2008.02.037>
5. *Bonardi M., Groppi F., Persico E., Manenti S., Abbas K., Holzwardt U., Simonelli F., Alfassi Z.B.* // Radiochim. Acta. 2011. V. 99. P. 1.
<https://doi.org/10.1524/ract.2011.1789>
6. *Khandaker M.U., Nagatsu K., Minegishi K., Wakui T., Zhang Ming-Rong, Otuka N.* // Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Research B. 2017. V. 403. P. 51.
<https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.04.087>
7. *Zagryadskii V.A., Latushkin S.T., Makoveeva K.A., Malamatui T.Yu., Novikov V.I., Ogloblin A.A., Unezhev V.N.* // At Energy. 2020. V. 128. P. 162.
<https://doi.org/10.1007/s10512-020-00668-6>
8. *Moustapha M.E., Ehrhardt G.J., Smith C.J., Szajek L.P., Eckelman W.C., Jurisson S.S.* // Nucl. Medicine and Biology. 2006. V. 33. Issue 1. P. 81.
<https://doi.org/10.1016/j.nucmedbio.2005.09.006>
9. *Загрядский В.А., Кравец Я.М., Латушкин С.Т., Маламут Т.Ю., Новиков В.И., Рыжков А.В., Удалова Т.А., Унежев В.Н., Чувилин Д.Ю.* // ПТЭ. 2021. № 4. С. 125.
<https://doi.org/10.31857/S0032816221040297>
10. *Aliev R.A., Kormazeva E.S., Furkina E.B., Moiseeva A.N., Zagryadskii V.A.* // Nanotechnol Russia. 2020. V. 15. P. 428.
<https://doi.org/10.1134/S1995078020040023>