

НАНЕСЕНИЕ РУТЕНИЯ-106 НА ВОГНУТУЮ МЕТАЛЛИЧЕСКУЮ ПОВЕРХНОСТЬ ПОДЛОЖКИ ЗАКРЫТОГО ИСТОЧНИКА β-ИЗЛУЧЕНИЯ – ОФТАЛЬМОАППЛИКАТОРА

© 2022 г. В. В. Шаповалов*, С. А. Артамонов, А. С. Болонкин, М. В. Бурмистров,
Т. А. Дёмина, Л. А. Каргина, А. Ю. Кутин, Г. Н. Мишекурина,
Н. А. Нерозин, Д. А. Подсобляев, М. Д. Самсонов, С. В. Ткачёв

*Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского,
249033, Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, д. 1
e-mail: vshapovalov@ippe.ru

Поступила в редакцию 29.09.2021, после доработки 24.12.2021, принята к публикации 30.12.2021

Описан способ нанесения ^{106}Ru на вогнутую металлическую поверхность подложки офтальмоаппликаторов, который заключается в подготовке поверхности подложки путем ее покрытия слоем серебра, приготовлении раствора ^{106}Ru в глицерине с необходимой объемной активностью, заполнении подложки приготовленным раствором и выпаривании раствора. Описанный способ позволяет наносить на поверхность подложки равномерно распределенный и прочно связанный с поверхностью слой ^{106}Ru .

Ключевые слова: ядерная медицина, офтальмология, ^{106}Ru , ^{106}Rh , офтальмоаппликатор, брахитерапия.

DOI: 10.31857/S0033831122040086, **EDN:** FRWCIV

Одним из перспективных методов терапии онкологических заболеваний глаз является брахитерапия с помощью офтальмоаппликаторов [1]. В медицинской практике используются офтальмоаппликаторы на основе таких радионуклидов, как $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ [2], ^{125}I [3] и $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$ [4]. В ФЭИ создан участок по изготовлению офтальмоаппликаторов на основе ^{106}Ru , который находится в равновесии с дочерним радионуклидом ^{106}Rh [5, 6].

Офтальмоаппликатор состоит из металлической оболочки и находящейся в ней активной подложки. Внешний вид офтальмоаппликаторов и представлен на рис. 1. Оболочка состоит из корпуса толщиной 0.8 мм с выпуклой наружной поверхностью и крышки с вогнутой наружной поверхностью толщиной 0.1 мм. Корпус и крышка изготовлены из нержавеющей стали 12Х18Н10Т и сварены герметичным кольцевым швом. Толщина корпуса офтальмоаппликатора выбрана достаточной для значительного ослабления β-излучения, а толщина крышки выбрана такой, чтобы обеспечить необхо-

димую жесткость и не слишком сильно ослаблять β-излучение.

Подложка толщиной 0.1 мм находится между корпусом и крышкой. Она представляет собой металлическую фольгу с нанесенным на её поверхность β-излучающим радионуклидом. К оболочке



Рис. 1. Внешний вид офтальмоаппликаторов.

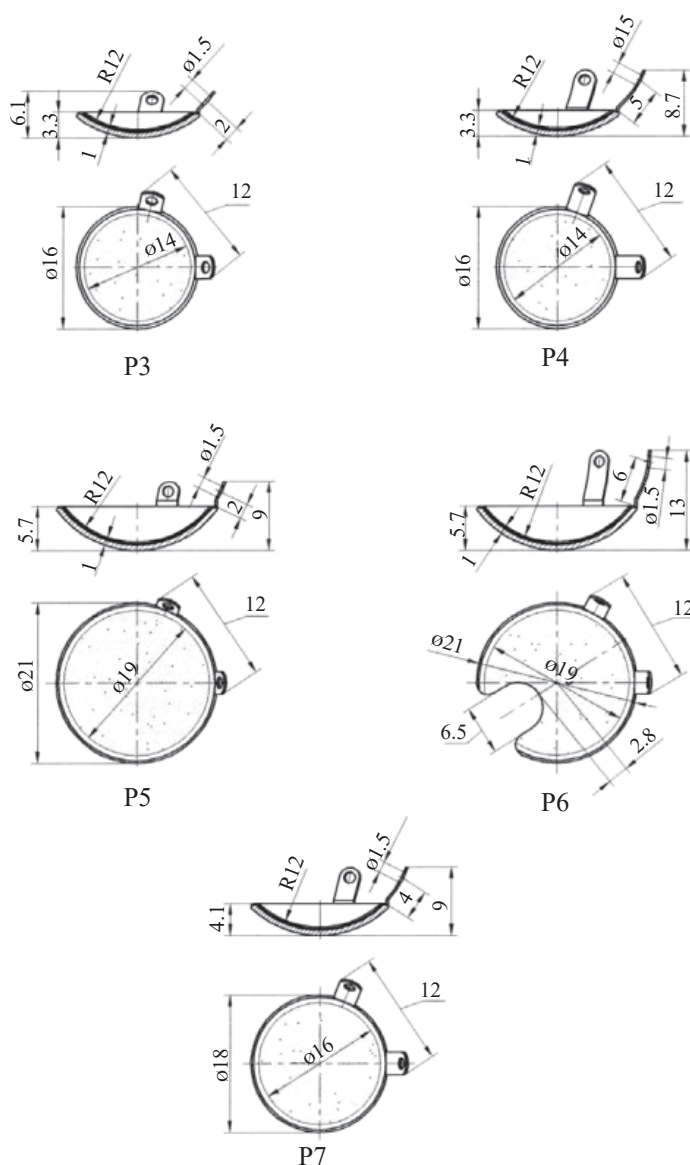


Рис. 2. Офтальмоаппликаторы, выпускаемые в ГНЦ РФ-ФЭИ.

офтальмоаппликатора приварены две проушины, с помощью которых его подшивают к глазу.

Радиометрическими характеристиками офтальмоаппликатора являются мощность поглощенной дозы β -излучения на рабочей поверхности офтальмоаппликатора (МПД), активность находящегося в нем радионуклида, а также коэффициент вариации распределения β -активности по рабочей поверхности офтальмоаппликатора.

В настоящее время производятся и поставляются в офтальмологические клиники офтальмоаппликаторы 5 типов: P3, P4, P5, P6 и P7 (рис. 2). Технические характеристики офтальмоаппликаторов при-

ведены в табл. 1. Следует отметить, что основное терапевтическое воздействие на опухоль оказывает β -излучение ^{106}Rh – дочернего продукта распада ^{106}Ru , энергия которого, как видно из таблицы, значительно больше, чем энергия β -излучения ^{106}Ru .

Поскольку энергия β -излучения ^{106}Rh существенно превосходит энергию β -излучения ^{90}Y – дочернего продукта распада ^{90}Sr ($E_{\beta}^{\max} = 2.27$ МэВ) и тем более самого ^{90}Sr ($E_{\beta}^{\max} = 0.54$ МэВ), а также энергию рентгеновского излучения при распаде ^{125}I ($E_{\text{ср}} = 28$ кэВ) [7], офтальмоаппликаторы на основе ^{106}Ru могут применяться для терапии опухолей глаз большей глубины и размеров.

При разработке технологии изготовления офтальмоаппликаторов одной из задач, которую необходимо было решить, являлся способ нанесения ^{106}Ru на подложку, обеспечивающий равномерное и экономное нанесение радионуклида.

Известен способ нанесения ^{106}Ru на металлическую поверхность подложки офтальмоаппликатора [8], включающий подготовку раствора соли радионуклида и электрохимическое безтоковое восстановление радионуклида на металлической поверхности подложки офтальмоаппликатора. При этом подложку полностью погружают в раствор соли ^{106}Ru и перемешивают раствор. Рутений-106 восстанавливается как на вогнутой, так и на выпуклой поверхности подложки.

Такой способ имеет следующие недостатки. Во-первых, окном для β -излучения офтальмоаппликатора является его крышка, прилегающая к вогнутой поверхности подложки, и ^{106}Ru целесообразно наносить только на эту поверхность. Нанесение ^{106}Ru на выпуклую поверхность увеличивает его расход, так как подложка значительно экранирует β -излучение. Во-вторых, извлечение ^{106}Ru из раствора его соли составляет всего 50%, остальные 50% остаются в растворе.

Известен также способ нанесения ^{106}Ru на серебро путем внутреннего электролиза [9] с использованием серебряного катода и алюминиевого анода и сульфаминовой кислоты в качестве электролита. Недостатки способа: сложность реализации процесса; большая длительность процесса (около суток); неполное извлечение ^{106}Ru из раствора (не более 80%).

Целью нашей работы явилась разработка процесса нанесения ^{106}Ru на металлическую подложку офтальмоаппликатора, лишённого вышеупомяну-

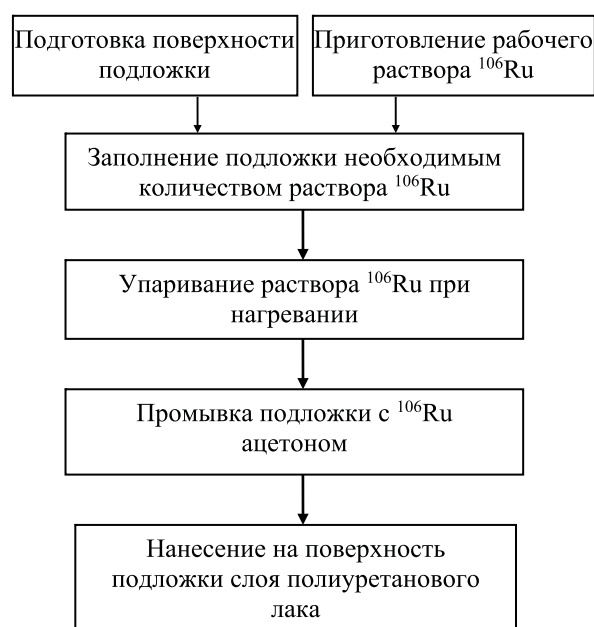


Рис. 3. Блок-схема процесса нанесения ^{106}Ru .

тых недостатков. Нами был предложен способ нанесения ^{106}Ru , состоящий из последовательности операций, представленных на рис. 3.

В работе использовали ^{106}Ru производства НИИАР со следующими характеристиками: химическая форма – хлорид $^{106}\text{Ru}(\text{III}, \text{IV})$ в 8 М HCl , объемная активность 40–50 мКи/мл, удельная активность 285 Ки/г.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Подготовка поверхности подложки (как правило медной) включает операции обезжиривания, декапирования и серебрения [10]. Обезжиривание выполняли 6 М NaOH с последующей промывкой проточной горячей, а затем дистиллированной водой. Декапирование проводили в 12 М HCl с по-

Таблица 1. Технические характеристики офтальмоаппликаторов производства ФЭИ с радионуклидами $^{106}\text{Ru} + ^{106}\text{Rh}$

Параметр	Значение
Радионуклиды на подложке	$^{106}\text{Ru} + ^{106}\text{Rh}$
Энергия β -излучения, $^{\text{max}}E_{\beta}$, кэВ	^{106}Ru 39, ^{106}Rh 3540 [7]
Период полураспада радионуклида $T_{1/2}$	^{106}Ru 373.6 сут [7], ^{106}Rh 30 с [6]
МПД, сГр/ч	Не менее 1200
Нанесенная активность ^{106}Ru , Бк	Не менее 2×10^7
Коэффициент вариации распределения ^{106}Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликатора	Не более 15

следующей промывкой дистиллированной водой и сушкой ацетоном.

Для серебрения готовили раствор азотнокислого серебра путем растворения 11 г серебра в 500 мл 8 М HNO_3 или 17 г нитрата серебра в 500 мл 0.5 М HNO_3 , а также раствор KI растворением 500 г KI в 500 мл дистиллированной воды. Раствор электролита серебрения получали смешиванием равных объемов растворов AgNO_3 и KI . Серебрение проводили в растворе электролита с серебряным анодом при постоянном токе 5 мА в течение 5 мин.

Рабочий раствор ^{106}Ru готовили путем упаривания с помощью электролампы раствора хлорида ^{106}Ru с активностью от 5 до 15 мКи в пенициллиновом флаконе до мокрых солей. К полученному осадку соли рутения добавляли необходимое количество 95%-ного раствора глицерина для получения раствора ^{106}Ru с объемной активностью 2.0–2.7 мКи/мл. Соль ^{106}Ru растворяли в глицерине при встряхивании на шейкере, предположительно с образованием раствора хлорида $^{106}\text{Ru}(\text{III}, \text{IV})$. После подготовки поверхности подложки и рабочего раствора ^{106}Ru подложку устанавливали горизонтально на подставке, вогнутой (рабочей) поверхностью вверх.

Подложку заполняли необходимым количеством рабочего раствора ^{106}Ru таким образом, чтобы он смачивал всю вогнутую поверхность подложки. Глицерин постепенно упаривали из подложки с помощью электролампы, в то время как ^{106}Ru оставался на поверхности подложки, замещая серебро, которое переходило в раствор, предположительно в виде хлорида серебра. Главное достоинство глицерина – высокая температура кипения (290°C), обеспечивающая достаточно медленное течение процесса испарения и, тем самым, равномерное нанесение ^{106}Ru на поверхность. При быстром испарении растворителя непрореагировавший ^{106}Ru будет скапливаться в нижней части подложки.

По окончании нанесения ^{106}Ru подложку промывали ацетоном и ее поверхность покрывали слоем полиуретанового лака путем распыления толщиной порядка 0.03 мм для защиты слоя рутения от повреждений при обращении с подложкой, особенно в процессе сборки офтальмоаппликатора.

После того, как подложка была подготовлена, проводили сборку офтальмоаппликатора в специальном позиционере. Собранный офтальмоапли-

катор направляли на измерение его радиометрических характеристик, в частности, для определения коэффициента вариации распределения ^{106}Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликатора.

Офтальмоаппликатор, радиометрические характеристики которого удовлетворяли техническим требованиям, герметизировали лазерной сваркой. Контроль герметичности офтальмоаппликатора выполняли по ГОСТ Р 50629–93 [11].

Контроль равномерности нанесения ^{106}Ru на подложки офтальмоаппликаторов типа Р3, Р4, Р5, Р7 осуществляли по схеме, приведенной на рис. 4. Схема контроля для офтальмоаппликаторов типа Р6 (с вырезом) приведена на рис. 5.

В состав установки по измерению характеристик офтальмоаппликаторов входили:

- β -спектрометрический комплекс СКС-07П-5 для определения коэффициента вариации распределения ^{106}Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликатора, активности радионуклида в офтальмоаппликаторе и МПД на рабочей поверхности офтальмоаппликатора;
- γ -спектрометрический комплекс на основе процессора импульсных сигналов SBS-55 и полупроводникового германий-литиевого детектора для определения активности радионуклида в офтальмоаппликаторе по сопутствующему γ -излучению;
- механическое устройство, обеспечивающее установку рабочих эталонов и офтальмоаппликаторов на заданном расстоянии от детекторов излучения в диапазоне от 10 до 70 см при определении активности радионуклида в офтальмоаппликаторах и определении средней МПД на рабочей поверхности офтальмоаппликаторов, сканирование рабочей поверхности офтальмоаппликаторов при диаметре осматриваемой области не более 3 см.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Примеры распределения ^{106}Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликатора приведены на рис. 4 и 5. Коэффициент вариации распределения ^{106}Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликатора, как правило, не превышал 10%. В этом случае степень рассеивания данных считается незначительной [12].

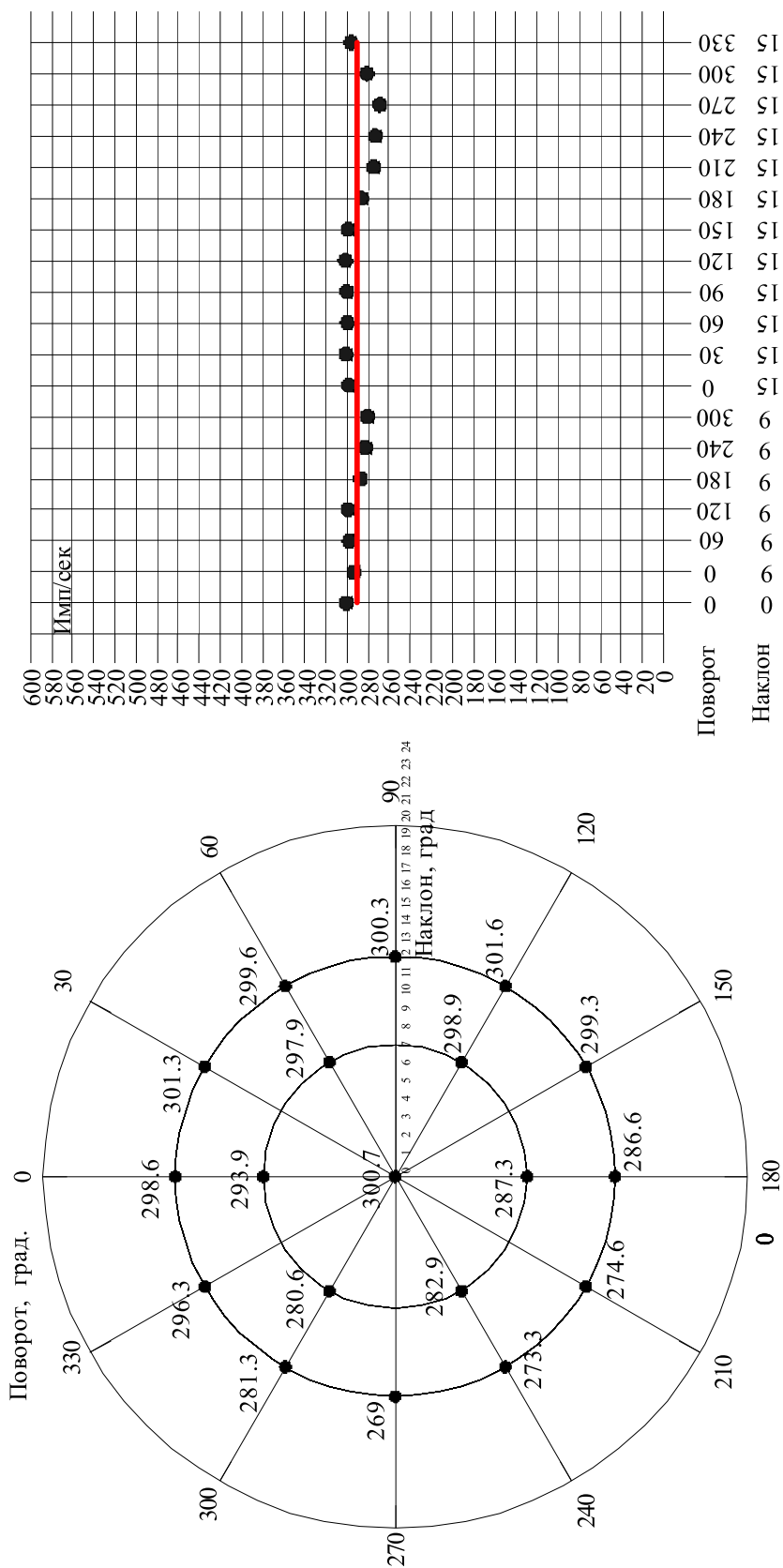


Рис. 4. Схема расположения точек для контроля равномерности распределения ^{106}Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликаторов типа Р3, Р4, Р5 и Р7 и результаты измерения коэффициента вариации распределения ^{106}Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликатора на примере офтальмоаппликатора Р7. Активность 1.34 мКи ($4.85 \times 10^7 \text{ Бк}$), коэффициент вариации 3.7%, МПД 1924 сГр/ч, относительная среднеквадратическая погрешность 13% (при доверительной вероятности $P = 0.95$).

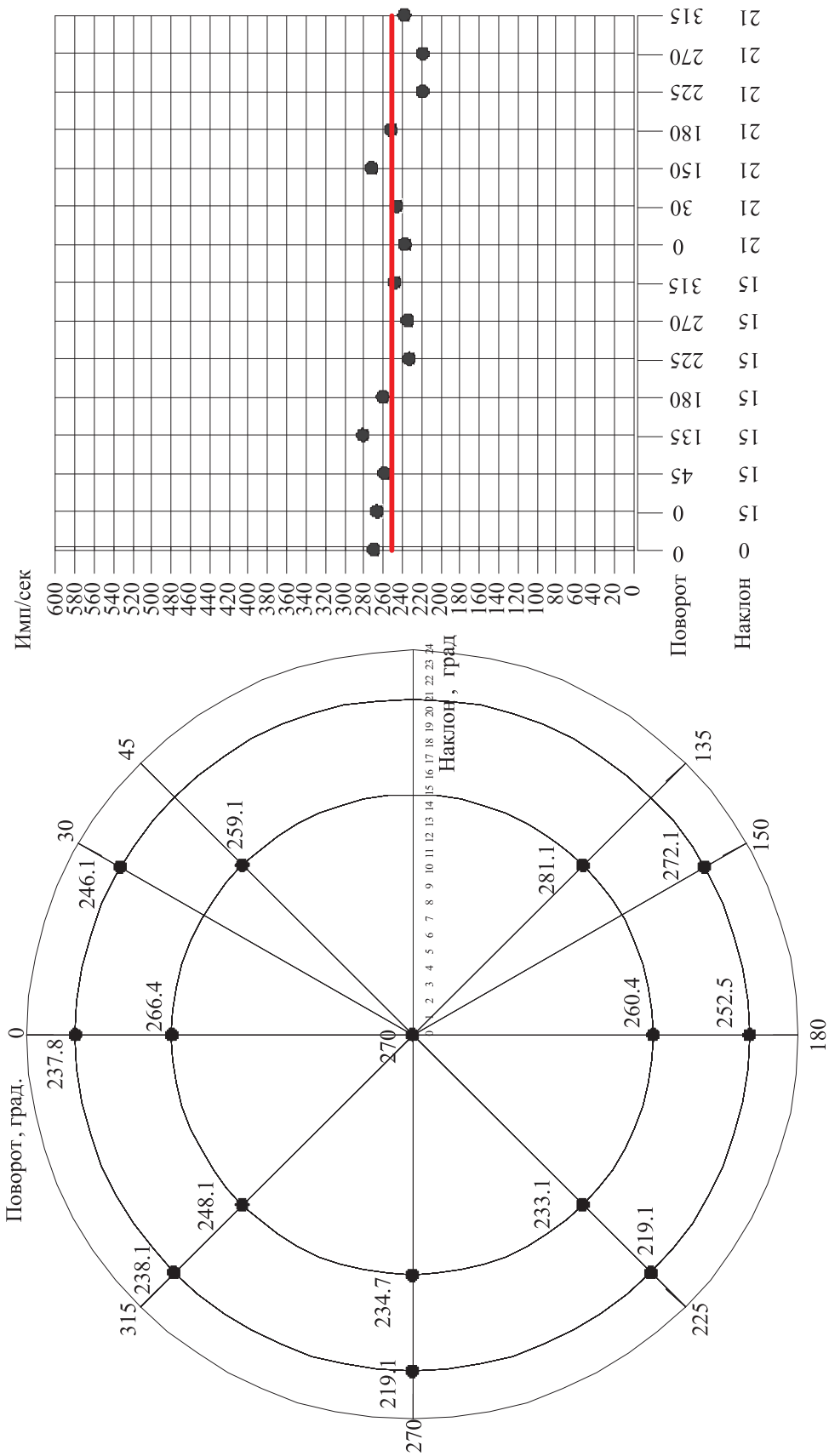


Рис. 5. Схема расположения точек для контроля равномерности распределения ¹⁰⁶Ru по рабочей поверхности офтальмоаппликатора типа Р6 (с вырезом). Активность 1.55 мКи (5.75 × 10⁷ Бк), коэффициент вариации 9.0%, МПД 1987 сГр/ч. Относительная среднеквадратическая погрешность 14% (при доверительной вероятности P = 0.95).

Таким образом, при изготовлении офтальмоаппликаторов образование прочного и равномерно распределенного по поверхности подложки слоя ^{106}Ru достигается путем подготовки поверхности подложки (серебрение) для обеспечения однородности ее поверхности и использования раствора ^{106}Ru в растворителе с высокой температурой кипения, что позволяет провести восстановление ^{106}Ru на подложке до начала испарения растворителя. Прочный слой ^{106}Ru на подложке позволяет обеспечить сборку офтальмоаппликатора перед сваркой практически без загрязнений и обеспечивает сохранение характеристик офтальмоаппликатора в процессе эксплуатации.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Офтальмоонкология: руководство для врачей / Под ред. А.Ф. Бровкиной. М.: Медицина, 2002. 424 с.
2. Балаклея И.И., Борисов Е.Д., Монахов К.С., Сытин В.П., Теплов Ф.П. А.с. СССР № 571143 // Б.И. 1980. № 3.
3. Hill J., Sealy R., Shackleton D., Stannard C., Korrubel J., Hering E., Loxton C // Br. J. Ophthalmol. 1992. Vol. 76, N 1. P. 91–94.
4. Kaulich T., Zurheide J., Haug T., Nusslin F., Bamberg M. // Radiother. Oncol. 2005. Vol. 76, N 1. P. 86–92.
5. Нерозин Н.А., Шаповалов В.В., Подсобляев Д.А., Ермолов Н.А. Пат. RU 2475875 // Б.И. 2013. № 5.
6. Нерозин Н.А., Хамьянов С.В., Шаповалов В.В., Тумохнович В.П., Ермолов Н.А. Патент RU 2467818 // Б.И. 2012. № 33.
7. National Nuclear Data Center (NNDC) in Brookhaven National Laboratory [Электронный ресурс]: NuDat (Nuclear structure & decay Data). URL: <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2> (дата обращения 26.02 2021).
8. Раздруккина С.П., Громов В.В. // Материаловедение. 2001. № 4. С. 52–54.
9. Mielcarski M., Puchalska I. // Nukleonika. 2002. Vol. 47, N 2. P. 83–86.
10. Буркат Г.К. Серебрение, золочение, палладирование, и родирование. Л.: Машиностроение, 1984. 86 с.
11. ГОСТ Р 50629-93. Радиоактивное вещество особого вида. Общие технические требования и методы испытаний.
12. <https://goszakupkirf.ru/poleznye-stati/219-koeffitsient-variatsii>.