

Разработка экологически безопасной технологии производства технеция-99m для ядерной медицины*

*В.Н.Борискин, Н.П.Дикий, А.Н.Довбня, Е.П.Медведева, В.А.Попенко,
Г.Д.Пугачев, Ю.Д.Тур, В.Л.Уваров*

ИФВЭЯФ ННЦ ХФТИ, г. Харьков

ВВЕДЕНИЕ

В современной ядерно-медицинской диагностике технеций-99m обеспечивает до 90% анализов при уровне годового потребления в развитых странах до 2 Ки на 10 тыс. населения [1]. Традиционная технология его производства основана преимущественно на наработке молибдена-99 (материнского ядра изотопа технеций-99m) в специализированных реакторах с последующей переработкой высокоактивной мишени методами “мокрой” радиохимии [2]. Эти процедуры достаточно сложны технически и экологически небезопасны. В ряде работ [3,4] была рассмотрена возможность наработки молибдена-99 на ускорителе электронов. Однако эти исследования не были доведены до практической реализации. Ранее авторами была продемонстрирована возможность создания технологии производства пертехнетата-99m (основного реагента для создания радиофармпрепаратов с технецием-99m) при помощи сверхточного ускорителя электронов [5]. В работе обобщены результаты исследований ядерно-физических основ данной технологии.

1. КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Воздействие электронами с энергией 20...25 МэВ на конвертер тормозного излучения сопровождается эмиссией из последнего смешанного потока тормозных фотонов, фотонейтронов и электронов. При анализе реакций, определяющих наработку молибдена-99 в мишени природного изотопного состава, ранее рассматривались, в основном, фотоядерные реакции на ^{100}Mo [3,4], содержание которого в природном молибдене составляет 9.63%. Для оптимизации условий генерации ^{99}Mo по этому каналу нами была разработана компьютерная модель

на основе программного пакета GEANT [6]. В рамках модели были исследованы процессы генерации излучения из конвертера (тантал) реального состава, охлаждаемого водой, а также взаимодействия этого излучения с Мо-мишенью в виде цилиндра массой 100 г (определяется условиями последующей радиохимической обработки). Выполненный в 2D-геометрии анализ показал, что оптимальная толщина Та для энергии электронов $E_0=20\text{МэВ}$ составляет 2 мм. При этом не менее 10% начальной мощности пучка выделяется в мишени, что при проектном значении мощности пучка 20 кВт создает проблемы с охлаждением такой мишени.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ МЕХАНИЗМОВ НАРАБОТКИ ^{99}Mo

2.1. Учитывая высокую стоимость обогащенного молибдена (до \$1000 за 1 г), в рамках разрабатываемой технологии особый интерес представляет изучение всех возможных каналов генерации ^{99}Mo (равно как и других изотопов) в мишени природного изотопного состава под воздействием выходящего из конвертера смешанного e,γ,n -излучения. Исследование этих процессов проводилось на ускорительном стенде ЭПОС [7] со следующими параметрами пучка:

энергия электронов E_0 , МэВ до 30

средний ток пучка, мкА до 500.

На выходе ускорителя пучок сканируется в вертикальной плоскости с частотой 3 Гц. Поперечный размер потока электронов в экспериментах намного превосходил размеры мишеней, что обеспечивало геометрию их облучения, близкую к плоскопараллельной. В процессе облучения мишени охлаждались водой, что определяло существенное увеличение потока нейтронов.

* Работа поддержана Украинским научно-технологическим центром, контракт № 432.

2.2. Для экспериментального исследования зависимости выхода ^{99}Mo от толщины и материала конвертера было проведено облучение пластинок из природного Мо толщиной 0.1 мм, помещавшихся непосредственно за конвертерами из W и Ta различной толщины. После облучения измерялась наведенная парциальная γ -активность пластинок на линии $E_\gamma=739.7$ кэВ, соответствующей ^{99}Mo . Измерения проводились при помощи Ge(Li) детектора, результаты приводились к одинаковому флюенсу электронов. Полученные таким образом зависимости выхода ^{99}Mo от толщины конвертера приведены на рис.1.

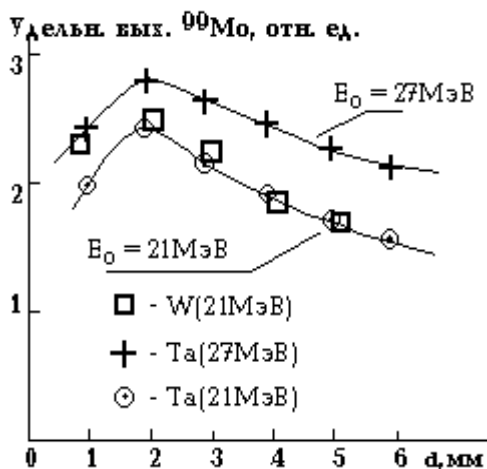


Рис. 1. Зависимость выхода ^{99}Mo от толщины конвертера

Одновременно определялась наработка “фоновых” для данной технологии изотопов ^{95}Nb , ^{96}Nb и ^{88}Zr (рис.2).

2.3. Для определения зависимости удельного выхода ^{99}Mo от толщины Мо-мишени пакет из 100 пластинок был помещен за Ta-конвертером оптимальной толщины 2 мм. После облучения была измерена активность пластинок на линии $E_\gamma=739.7$ кэВ с учетом глубины их расположения в пакете. Результаты представлены на рис. 3.

2.4. Для изучения вклада различных компонент взаимодействующего с мишенью излучения в выход ^{99}Mo было выполнено облучение Мо-пластинок в геометрии, приведенной на рис. 4. Полученные при этом результаты представлены на рис. 5.

3. ОБСУЖДЕНИЕ

Анализ экспериментальных данных (рис.1) показывает, что заметная наработка ^{99}Mo имеет место при непосредственном воздействии ускоренных электронов на Мо-мишень, что можно объяснить протеканием в ней $(e, e'n)$ и $(e, e'p)$ реакций на ^{100}Mo . В последнем случае наработка ^{99}Mo идет по схеме $^{100}\text{Mo}(e, e'p) \rightarrow ^{99}\text{Nb}(T_{1/2}=15\text{с}) \rightarrow ^{99}\text{Mo}$. Эти реакции, по-

видимому, определяют и начальный участок приведенной на рис.3 зависимости (до суммарной толщины конвертера и мишени 5...6, $\text{г}/\text{см}^2$). Последний вывод подтверждают также зависимости выхода ^{95}Nb и ^{96}Nb от толщины конвертера (рис.2^а и 2^б), не имеющие максимума при $d_{\text{Ta}}=2\text{мм}$ (соответствующего максимуму выхода тормозных γ -квантов).

Последний проявляется в аналогичной зависимости для ^{88}Zr (рис.2в, $E_0=21$ МэВ), по-видимому, за счет реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, \alpha)^{88}\text{Zr}$, в то время как при $E_0=27$ МэВ вероятно превалирует канал $^{92}\text{Mo}(e, e'\alpha)^{88}\text{Zr}$.

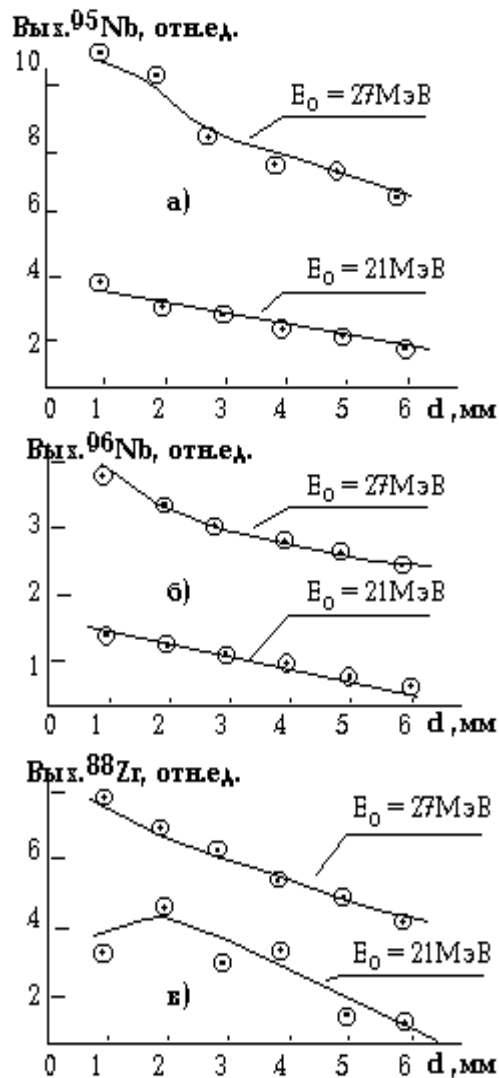


Рис. 2. Зависимость выходов “фоновых” изотопов от толщины Ta-конвертера.

Данные на рис. 4,5 также, по нашему мнению, демонстрируют суперпозицию разных каналов наработки ^{99}Mo в природном молибдене. Так, основной вклад в активность образцов 1,14,15 можно объяснить (e, e') -реакциями. Наблюдаемые в образцах

4, 8 и 11 максимумы активности можно связать с дополнительным вкладом фотоядерного канала как за счет тормозных фотонов из конвертера (образцы 7, 8), так и генерацией фотонов в самих образцах (4, 11). Абсолютный максимум наработки ^{99}Mo , наблюдаемый на образце 16 (10 мкКи/мкА·час·гМо), можно объяснить, помимо упомянутых реакций, также проявлением $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ -канала.

Вых. ^{99}Mo , отн.ед.

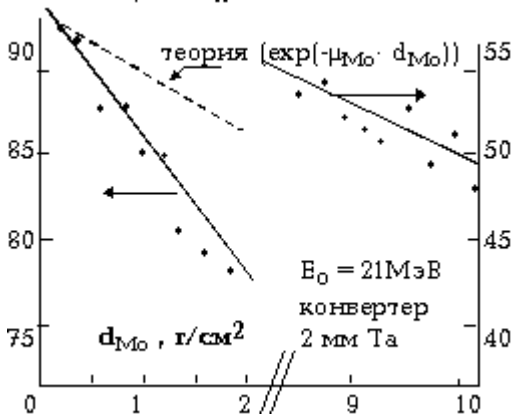


Рис. 3. Зависимость выхода ^{99}Mo от толщины Мо-мишени.

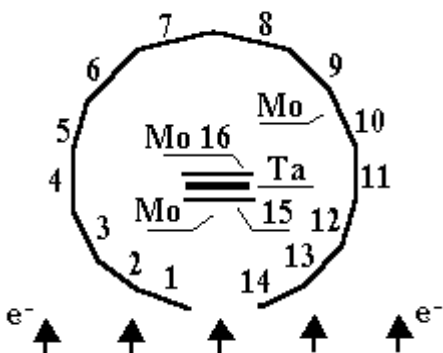


Рис. 4. Геометрия облучения Мо-мишени.



Рис.5. Выход Мо из элементов мишени (рис.4).

Для оценки его вклада за конвертером был помещен образец молибдена, обогащенный изотопом ^{98}Mo (95%). Измеренный на образце после облучения

выход ^{99}Mo показывает, что в мишени из природного молибдена до 50% ^{99}Mo может определяться нейтронами (особенно в присутствии воды).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные исследования показали, что путем облучения мишени из природного молибдена на сильноточном ускорителе электронов можно проводить эффективную наработку ^{99}Mo на изотопах ^{100}Mo и ^{98}Mo . Оценки показывают, что в случае пучка с энергией 20...25 МэВ и средним током до 1мА можно производить в сутки до 1Ки ^{99}Mo . Этой активности достаточно для обеспечения нужд региона с населением в несколько миллионов человек. Применение электролиза растворенной мишени для выделения из нее технеция-99m обеспечивает его достаточную изотопную чистоту, что подтвердили медицинские испытания изготовленных данным методом радиофармпрепаратов [5].

Предлагаемая технология позволяет производить технеций-99m в экологически безопасных условиях на сравнительно недорогих ускорителях электронов. Ее дополнительным преимуществом является совместимость с другими традиционными для ускорителей электронов программами (стерилизация, активационный анализ, модификация материалов и т.д.).

Литература

1. U.Amaldi, Proc.V Europ.Part.Acc.Conf.EPAC-96, v.1,p.244-248.
2. В.А.Соколов. Генераторы короткоживущих радиоактивных изотопов. М.:Атомиздат, 1975, с.29.
3. М.Н.МсGregor.-Rep. N 1771, Appl.Rad. Corp. Walnut Greek,California,USA.
4. М.Г.Давыдов, С.А.Марескин. Радиохимия, 1993, № 5, с.91-96.
5. М.П.Дикий та ін. Укр. радіолог. журн.1996, №2, с.186.
6. М.П.Дикий и др. ВАНТ, сер.ЯФИ, 1997, вып.4,5(31,32), т.П,с. 165-167.
7. А.Н.Dovbnya et al. Bull.Amer.Phys.Soc.,1997, v.42, N3, p.1391.

Статья поступила в редакцию 25 мая 1998 г.,
в издательство 1 июня 1998 г.