

Ա.Ի.ԱԼԻԽԱՆՅԱՆԻ ԱՆՎԱՆ ԱԶԳԱՅԻՆ ԳԻՏԱԿԱՆ ԼԱԲՈՐԱՏՈՐԻԱ

(Երևանի ֆիզիկայի ինստիտուտ)

Հարությունյան Գևորգ Սուրենի

**ԱՐԱԳԱՑՈՒՑՉԱՅԻՆ ՄԵԹՈԴՆԵՐՈՎ ՏԵԽՆԵՑԻՈՒՄ 99Մ ՍՏԱՆԱԼՈՒ
ՀԱՄԱՐ ԹԻՐԱԽԻ ՊԱՏՐԱՍՏՄԱՆ և ՄՇԱԿՄԱՆ ՈՒ ՓՆՋԻ ՎԵՐԱՀՄԿՄԱՆ
ՏԵԽՆՈԼՈԳԻԱՆԵՐԸ:**

**Ա.04.16- “Միջուկի, տարրական մասնիկների և տիեզերական ճառագայթների
ֆիզիկա” մասնագիտությամբ տեխնիկական գիտությունների թեկնածուի
գիտական աստիճանի հայցման ատենախոսության**

ՍԵՂՄԱԳԻՐ

ԵՐԵՎԱՆ-2016

НАЦИОНАЛЬНАЯ НАУЧНАЯ ЛАБОРАТОРИЯ ИМ. А.И.АЛИХАНИЯ

(Ереванский физический институт)

Арутюнян Геворг Суренович

**УСКОРИТЕЛЬНЫЕ МЕТОДЫ ПОЛУЧЕНИЯ ТЕХНЕЦИЯ 99М -
ТЕХНОЛОГИИ ПОДГОТОВКИ И ОБРАБОТКИ МИШЕНИ И КОНТРОЛЯ ПУЧКА**

АВТОРЕФЕРАТ

**Диссертации на соискание ученой степени кандидата технических наук по
специальности А.04.16 “Физика ядра,
элементарных частиц и космических лучей”**

ЕРЕВАН- 2016

Ատենախոսության թեման հաստատվել է ԱԱԳԼ (ԵրՖԻ)-ի գիտական խորհրդում:

Գիտական ղեկավար՝

Ֆիզմաթ գիտությունների թեկնածու

Ա.Է. Ավետիսյան (ԱԱԳԼ)

Պաշտոնական ընդդիմախոսներ՝

Ֆիզմաթ գիտությունների դոկտոր

Դանագուլյան Ա.Ս. (ԵՊՀ)

տեխնիկական գիտությունների թեկնածու

Հ.Ս. Վարդանյան

Առաջատար կազմակերպություն՝ "CANDLE" Սինխրոտրոնային
Հետազոտությունների Ինստիտուտ

Պաշտպանությունը կայանալու է 2016 թ. մայիսի 31-ին, ժամը 14-00-ին,
ԱԱԳԼ-ի «Միջուկի և տարրական մասնիկների ֆիզիկա» ԲՈՀ-ի 024
մասնագիտական խորհրդում (Երևան-0036, Ալիխանյան Եղբայրների փ. 2):

Ատենախոսությանը կարելի է ծանոթանալ ԱԱԳԼ-ի գրադարանում:
Սեղմագիրը առաքված է 2016 թ. ապրիլի 28-ին;

Մասնագիտական խորհրդի գիտական քարտուղար՝

Ֆիզմաթ գիտությունների դոկտոր

Դ.Ռ. Կարախանյան



Тема диссертации утверждена ученым советом Национальной Научной
Лаборатории (ЕрФИ) имени А.И.Алиханяна

Научный руководитель:

кандидат физико-математических наук

А.Э.Аветисян (ННЛА)

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук

А.С.Данагулян (ЕГУ)

кандидат технических наук

Г.С. Варданян

Ведущая организация: "CANDLE" Институт Синхротронных Исследований

Защита состоится 31 мая в 14-00 часов на заседании специализированного совета
ВАК 024 "Физика ядра и элементарных частиц" Национальной Научной
Лаборатории имени А.И.Алиханяна (ЕрФИ) (Ереван-0036, ул. Братьев Алиханян 2).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ННЛА

Автореферат разослан 28-го апреля 2016 г.

Ученый секретарь спец. совета

Доктор физико-математических наук

Д.Р.Караханян



Актуальность проблемы

Изотопы широко применяются в современной медицине. Сегодня более 70% производимых в мире стабильных изотопов и более 50% радиоактивных используется в медицине. Интерес медиков к изотопам объясняется высокой эффективностью их применения и в диагностике и в терапии. Именно для диагностических целей используется сегодня около 98% изотопов, поступающих в медицинский сектор. Радионуклиды применяются в диагностике и лечении различных заболеваний человека, изучении технологических, физико-химических, биологических процессов и позволяют изучать перемещение вещества в пространстве и во времени на любой стадии исследуемого процесса.

Производство медицинских радиоизотопов является актуальной задачей также для республики Армения. Несмотря на наличие здесь Атомной электростанции производство радиоизотопов на ее базе вряд ли в ближайшее время возможно, в частности из-за трудностей технического характера: реактор ААЭС является корпусным реактором типа ВВЭР, где реализация радиационных технологий, как было отмечено выше, ограничена условиями эксплуатации реактора. С другой стороны в Армении уже десятки лет существует и развивается ускорительная физика и техника. В условиях проблем эксплуатации ускорителей высоких энергий и с малым током (типа Ереванского кольцевого синхротрона АРУС) приобретают актуальность разработка, строительство и эксплуатация ускорителей малых энергий для прикладных целей. Именно такой целью является задача производства радиоизотопов на циклотроне С18.

В настоящее время на площадке по соседству с ЕрФИ создан Центр по производству изотопов, в котором ключевым является наличие циклотрона С18 производства бельгийской фирмы IBA (Ion Beam Application) на энергию 18 МэВ. Запланировано получение на пучке протонов этого циклотрона одного из самых востребованных изотопов ^{18}F для ПЭТ (Позитронная Эмиссионная Томография). При этом для сотрудников ЕрФИ имеется возможность использования выведенного пучка протонов в специально для этой цели построенный экспериментальный зал как для фундаментальных прикладных исследований, так и для исследования возможности получения других изотопов, в частности $^{99\text{m}}\text{Tc}$, для которых не имеется разработанной и внедренной заводской технологии.

Цель и задачи исследования

Для осуществления вышеуказанной выше задачи получения других изотопов помимо технологически запланированного производства изотопа ^{18}F , а также исследования способов оптимизации производства изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$ и других изотопов были определены следующие цели:

- разработка и внедрение технологии изготовления мишеней, приспособленных для облучения под высокоинтенсивным пучком протонов;

- решение вопросов обеспечения механической прочности порошковых мишеней, обеспечения эффективного отвода тепла, выделяющегося в теле мишени при облучении;
- расчет и моделирование процессов выделения тепла в мишени и отвода тепла при различных режимах облучения и различных профилях протонного пучка;
- создание системы прецизионного измерения поперечного профиля протонного пучка;
- разработка и создание системы контроля радиохимической чистоты полученного пертехнетата;
- разработка и создание системы восстановления дорогостоящего обогащенного ^{100}Mo для многократного использования в качестве мишени.

Результаты проведенных исследований и разработок будут использованы для создания полного комплекса технологического оборудования и технологий, позволяющих проводить эффективное облучение мишеней на пучке протонов для получения конечного продукта в виде пертехнетата $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Научная новизна и практическая ценность работы

Научно-техническая новизна работы заключается в создании новых технологий, необходимых для проведения работ по получению $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на протонном пучке циклотрона. Некоторые из этих технологий – например лазерная обработка поверхности порошковой мишени для повышения механической прочности и теплопроводности, расчет тепловой нагрузки на мишень методом конечных элементов и т.д. – являются абсолютной новизной в технологии ускорительных методов получения изотопов. Также комплексная технология восстановления мишенного молибдена из растворенного состояния до порошкового металла является новой в данной области. Применение метода вибрирующей струны для измерения поперечного профиля протонного и особенно нейтронного пучка является новым неразрушающим методом такого мониторинга.

Практическая ценность работы заключается в создании полного технологического цикла для получения $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на протонных пучках. Все описываемые в данной работе технологии и созданные на их основе устройства и приборы опробованы и показали полное соответствие параметров техническим требованиям.

Основные защищаемые положения:

- Технология изготовления и лазерной обработки мишени из порошка молибдена;
- Технология криогенного охлаждения мишени;
- Расчет и моделирование тепловой нагрузки на мишень;
- Технология неразрушающего контроля профиля протонного пучка с помощью датчика на вибрирующей струне;
- Модификации датчика на базе вибрирующей струны;

- Комплекс для восстановления металлического Мо после облучения из растворенной в щелочном растворе мишени после экстракции наработанного изотопа ^{99m}Tc ;
- Системы контроля радиохимической чистоты полученного пертехнетата.

Апробация работы и публикации. Основные результаты диссертационной работы докладывались на научных семинарах Национальной Научной Лаборатории им. А.Алиханяна (ЕрФИ), а также были доложены на международных конференциях и семинарах:

- **“Fifteenth International Symposium on Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics (CGS15)”**, Dresden, August 25-29, 2014
- Международная научно-практическая конференция «АКТУАЛЬНЫЕ ПРОБЛЕМЫ РАЗРАБОТКИ, ПРОИЗВОДСТВА И ПРИМЕНЕНИЯ РАДИОФАРМАЦЕВТИЧЕСКИХ ПРЕПАРАТОВ» **РАДИОФАРМА-2015, 17 - 19 июня 2015 года**, Москва
- Final Research Co-ordination Meeting under the CRP on "Accelerator-based Alternatives to Non-HEU Production of Mo-99/Tc-99m" held under International Atomic Energy Agency (IAEA), June 22-26, 2015
- Russian Particle Accelerator Conferences (2008; Zvenigorod, Russia)

По теме диссертации опубликовано 8 работ в журналах Review of Scientific Instruments, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A., European Physical Journal, International Journal of Engineering Science and Innovative Technology, Physical Review Special Topics – Accelerators and Beams, и Известия НАН Армении, Физика.

Объем и структура диссертации:

Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения, содержит 122 страниц печатного текста, включая 54 рисунков, 13 таблиц и список литературы из 79 наименований.

Краткое содержание диссертации

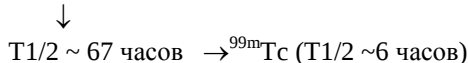
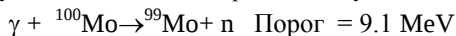
Введение содержит обоснование актуальности получения изотопа ^{99m}Tc ускорительными методами. Приведены структура и основные положения диссертации. Приведены цели работы для создания полного комплекса технологического оборудования и технологий, позволяющих проводить эффективное облучение мишеней на пучке протонов для получения конечного продукта в виде пертехнетата ^{99m}Tc .

В первой главе приведен обзор применения радиоизотопов в современной медицине и отмечена актуальность производства радиоизотопов в Армении.

Приведен обзор методов и технологий производства изотопов с помощью ядерных реакторов, электронных и протонных ускорителей, проведено их сравнение. Отмечено, что в условиях Армении наиболее привлекательным являются ускорительные методы производства изотопов, причем очень перспективным может стать производство технеция, как самого востребованного на сегодняшний день

радиоизотопа. Подробно описана известная на сегодня технология производства технеция с помощью ускорителей.

Отмечено, что одним из возможных путей получения ^{99m}Tc является фотоядерная реакция для получения материнского изотопа ^{99}Mo , при которой ^{100}Mo облучается интенсивным фотонным пучком по следующей схеме:



Порог данной реакции - 9.1 МэВ. Схема распада ^{99}Mo изображена на Рис. 1.

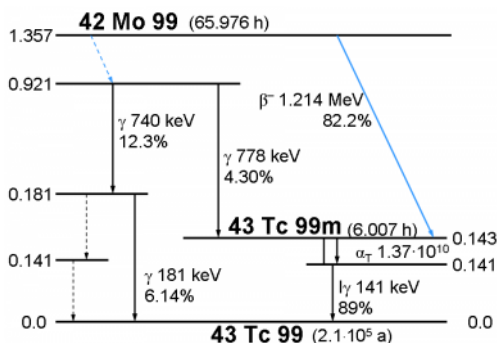


Рис. 1 Схема распада ^{99}Mo .

Рассмотрены экспериментальные работы для изучения возможности производства изотопа ^{99m}Tc данным методом на линейном инжекторе LUE50 ускорителя АРУС. Фотонный пучок получался в результате тормозного излучения электронов в танталовом конверторе. Экспериментальная установка для получения ^{99}Mo изображена на Рис. 2.

Отмечено, что изотоп ^{99m}Tc также может быть непосредственно произведен на циклотроне методом бомбардировки ^{100}Mo протонным пучком в реакции $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99m}\text{Tc}$. Одним из главных преимуществ прямого получения ^{99m}Tc при использовании циклотронов, являются безвредность для окружающей среды и более простая утилизации отходов по сравнению с реакторным методом получения. Несмотря сравнительно небольшого периода полураспада 6.02 часа, прямое производство с большим успехом может быть использовано для местного применения в пределах Армении и ближайшего региона.

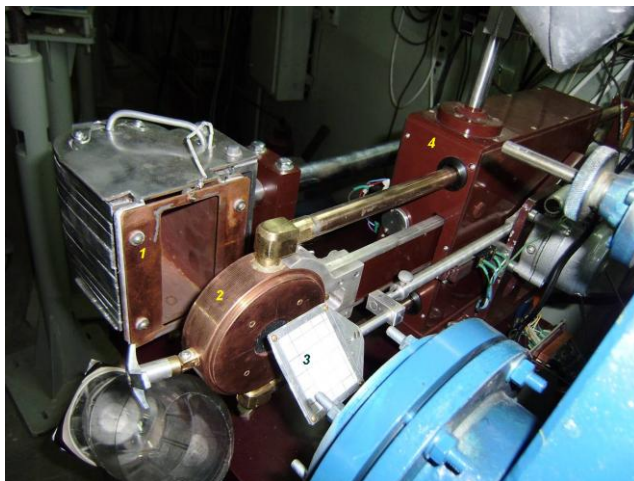


Рис. 2 Экспериментальная установка для получения ^{99}Mo на линейном инжекторе LUE50 ускорителя АРУС: 1 – цилиндр Фарадея для измерения интенсивности пучка, 2 – мишенный модуль, 3 – люминифорный экран для ТВ контроля профиля пучка, 4 – устройство дистанционного перемещения мишенного модуля.

Сечение реакции $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99m}\text{Tc}$ изображено на Рис. 3.

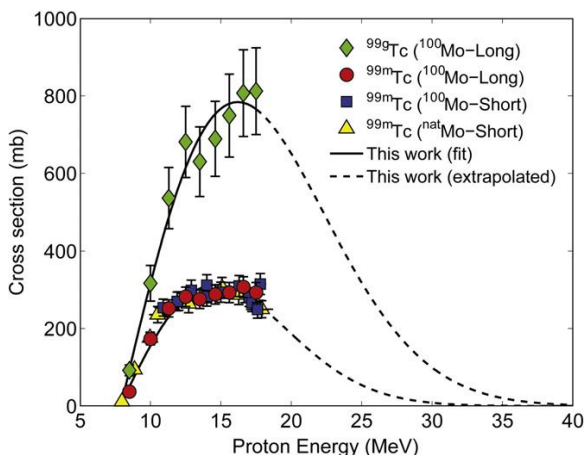


Рис. 3 Сечение реакции $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99m}\text{Tc}$.

Исходя из приведенного анализа сделан вывод, что наиболее оптимальным является использование протонных пучков с энергией 12-22 МэВ. Данные

параметры вполне соответствуют параметрам циклотрона С18, который планируется ввести в строй в ближайшее время для производства изотопа ^{18}F для ПЭТ. Отмечено, что дополнительное производство технеция существенно расширит возможности использования современных методов ядерной медицины.

Во второй главе диссертации описана разработка технологии изготовления и облучения мишеней для получения $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на циклотроне С18. Разработана и внедрена технология изготовления твердотельной мишени из порошка молибдена – с дальнейшей лазерной обработкой поверхности мишени, что привело к значительному увеличению механической прочности и теплопроводности мишени.

Для изготовления твердых дисков из порошка молибдена для облучения был применен стандартный метод прессовки порошка прессом с силой примерно 40000 N, разработаны и изготовлены соответствующие матрицы и пуасоны.

Для увеличения механической прочности был разработан метод лазерной обработки поверхности таблетки. Был использован лазер со следующими параметрами: длина волны- 1.6 мкм, энергия импульса - 250 мДж, частота повторения импульсов- 40 Гц, длительность импульса - 200 мксек.

Было изготовлено специальное устройство для поверхностной обработки таблеток (см. Рис. 4). Лазерный луч проходил через пучковый расширитель и далее фокусировался линзой с фокусным расстоянием $F = 150$ мм. Диаметр светового пятна варьировался в диапазоне 150-300 мкм.



Рис. 4 Устройство автоматической обработки молибденовых мишеней лазером: слева - твердотельный лазер: 1 - лазер, 2 - расширитель пучка; справа - 2-х координатный стол с удаленным компьютерным управлением.

При данном методе обработки молибденовый порошок плавится в следе лазера, создавая полосу твердого молибдена шириной нескольких сотен микрометров. Изображения таблетки после обработке показаны на Рис. 5.

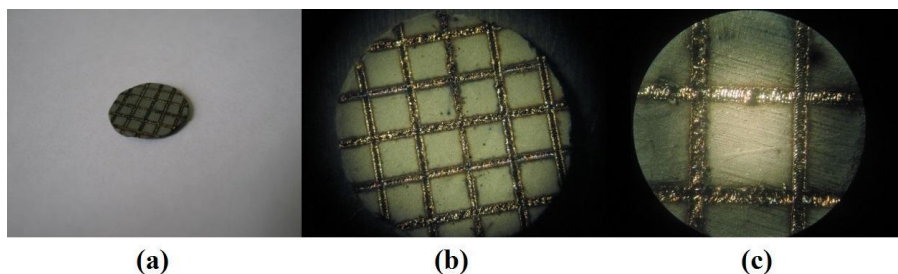


Рис. 5 Молибденовая таблетка, обработанная лазерным пучком при разных увеличениях: (а) общий вид, (b) увеличение в 20 раз, (с) увеличение в 42 раза.

Были изготовлены диски-подложки из титана и в его мишенном углублении был запрессован мелкодисперсный порошок природного молибдена. Поверхности были подвергнута лазерной обработке по вышеприведенной технологии.



Рис. 6 Мишенный диск с запрессованным молибденом после лазерной обработки (слева), с 40-кратным увеличением (справа).

Приведено теоретическое обоснование возможности криогенного охлаждения твердотельной мишени при облучении пучком протонов циклотрона С18. Проведен расчет методом конечных элементов тепловой нагрузки на мишени при различных профилях пучка на поверхности мишени, выбраны оптимальные параметры профиля пучка.

Произведен расчет для разных величин среднеквадратического отклонения гауссовского распределения пучка циклотрона, материала мишенного диска и режима охлаждения мишени. Для каждого случая найден ток пучка, при котором максимальная температура мишени не превышает 600°C (температура при которой металлический молибден начинает окисляться). Примеры решения поставленной задачи для мишенного диска из титана в случае тылового охлаждения жидким азотом при различных распределений пучка приведены на Рис. 7.

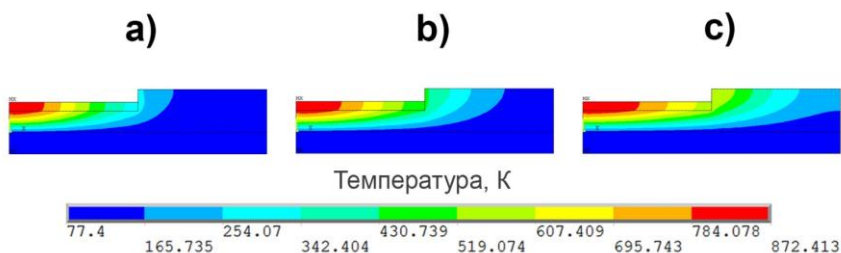


Рис. 7 Распределения температур в мишенном диске из титана в случае тылового охлаждения жидким азотом: а) при среднеквадратическом отклонении гауссовского распределения пучка $\sigma - 3$ мм и токе пучка – 16.4 μA , б) при среднеквадратическом отклонении гауссовского распределения пучка $\sigma - 4$ мм и токе пучка – 25.2 μA с) при среднеквадратическом отклонении гауссовского распределения пучка $\sigma - 5$ мм и токе пучка – 36.2 μA .

Результаты расчетов максимально допустимых и эффективных токов при которых температура поверхности не превышает 600 $^{\circ}\text{C}$ в зависимости от распределения пучка, материала мишенного диска и метода охлаждения приведены в Табл. 1.

Табл. 1 Результаты расчетов в зависимости от распределения пучка, материала мишенного диска и метода охлаждения.

Входные параметры			Полученные параметры			
σ , mm	Материал миш. диска	Метод охлажд.	Макс. ток пучка, μA	Эффективность пучка, %	Эффективный ток, μA	Макс. Температура мишени, $^{\circ}\text{K}$
3	Ti	Вода	11.6	90.5	10.5	873
4	Ti	Вода	18	73.8	13.3	875
5	Ti	Вода	26	59.5	15.5	875
3	Ni	Вода	27	90.5	24.4	876
4	Ni	Вода	44.1	73.8	32.5	874
5	Ni	Вода	66	59.5	39.3	874
3	Ti	Азот	16.4	90.5	14.8	873
4	Ti	Азот	25.2	73.8	18.6	873
5	Ti	Азот	36.2	59.5	21.5	872
3	Ni	Азот	32.8	90.5	29.7	872
4	Ni	Азот	53.3	73.8	39.3	874
5	Ni	Азот	79.1	59.5	47.1	873

Разработана технология криогенного охлаждения мишени, что позволит значительно увеличить интенсивность пучка при облучении и, соответственно, эффективности наработки изотопа. Была разработана и изготовлена

соответствующая экспериментальная установка. В качестве имитатора нагрева от пучка служил твердотельный лазер с длиной волны 1.06 микрон и максимальной мощностью пучка 50 Вт. Пучок этого лазера был направлен на лицевую поверхность мишени из запрессованного металлического молибдена (см. Рис. 8). Температура поверхности мишени измерялась дистанционным инфракрасным термометром – пирометром.

Проведенный качественный эксперимент показал принципиальную возможность криогенного охлаждения мишени при облучении пучком протонов от циклотрона С18.

Проведенные исследования показали также актуальность задачи согласования параметров мишени с распределением протонного пучка. Такое согласование может позволить применять большие значения тока пучка, что даст более эффективный выход изотопов.

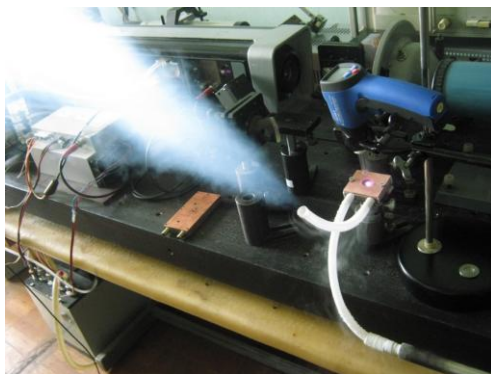


Рис. 8 Система лазерного нагрева мишени и криогенного охлаждения в действии.

Третья глава диссертации посвящена измерению поперечных профилей электронных, протонных и нейтронных пучков. Задача, как показано в предыдущей главе, актуальна для повышения эффективности производства радиоизотопов на облучаемых с помощью таких пучков мишеней. В качестве методов сканирования пучков предложено применять технологию разработанных в ННЛА датчиков вибрирующей струны, обладающих беспрецедентной точностью и большим динамическим диапазоном. Принцип действия данных датчиков заключается в использовании при сканировании пучка вибрирующей струны, частота колебаний которой определяется интенсивностью пучка. Изменение частоты обуславливается изменением температуры струны и соответствующим изменением натяжения струны.

Разные модификации данного датчика позволяют проводить измерения на электронном, протонном или нейтронном пучках. Описан многострунный тип датчика, позволяющий оценивать профиль пучка по нескольким точкам без

применения сложных сканирующих механизмов. Отмечен, что двухструнный вариант датчика, особенно с учетом его большой чувствительности может служить монитором положения пучка в вакуумной камере ускорителей. Описано применение пятиструнной модификации датчика для измерения профиля синхротронного излучения на электронном ускорителе APS ANL (USA). Отличительной особенностью данного эксперимента являлось то, что измерения проводились в воздухе и измерению подвергалась только жесткая часть синхротронного излучения, проходящая через терминаторный фланец из меди толщиной 8 мм. Нами был исследован эффект взаимного теплового влияния струн друг на друга и была произведена соответствующая коррекция экспериментальных данных. На Рис. 9 представлены результаты эксперимента (слева).

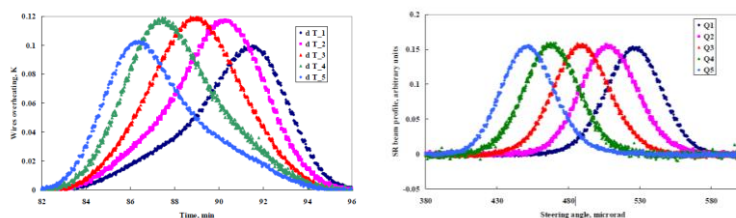


Рис. 9 а) исходные экспериментальные профили при свипировании электронного пучка с помощью магнитных линз фокусирующей системы ускорителя. б) Восстановленные профили пучка синхротронного излучения с учетом взаимного теплового влияния.

Сканирование пучка электронов в накопителе производилось с помощью корректирующих линз системы фокусировки накопителя. Несовпадение профилей на левом рис. обусловлено тепловым взаимовлиянием струн друг на друга. Восстановленные с учетом теплопередачи между струнами в рамках линейной матрицы коэффициентов передачи тепла профили синхротронного излучения представлены на Рис. 9 справа.

Подробно описана разработанная модификация датчика с отдельными струнами, в которой одна струна является вибрирующей (измерительной), а другая служит мишенью для пучка. Изменение натяжения мишенной струны передается на вибрирующую с помощью специального коромысельного механизма. Данная модификация позволяет повысить эффективную апертуру датчика и использовать диэлектрические материалы с высокой теплостойкостью для взаимодействующей с пучком струны, что может существенно повысить динамический диапазон датчика.

Нами была проведено подробное исследование характеристик датчиков в зависимости от рабочей атмосферы датчика, уровня потока мощности и высаживаемой на струну. Теплопередача на струну моделировалась с помощью постоянного тока. Была разработана специальная схема развязки цепи постоянного тока от тока автогенерации, так что можно было исследовать аналогичным образом

датчики, в которых вибрирующая струна одновременно является измерительной. Было показано, что пределы по току определяются способностью струны к восстановлению своих параметров до ее прогрева. На Рис. 10Рис. 9 приведен широкоаперный датчик в вакууме, измерительная струна которого раскалена постоянным током 1.3 А.



Рис. 10 Вид датчика с отдельными струнами. На измерительную струну подается постоянный ток 1.3 А, имитирующий высаживание на струну тепловой мощности около 6000 мВт.

На Рис. 11 приведены результаты проведенного нами исследования по определению предельных величин использования датчика.

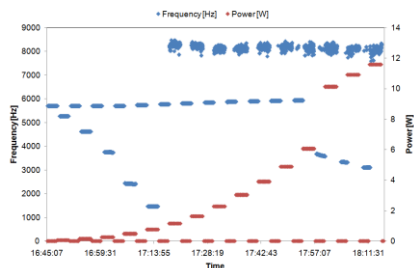


Рис. 11 Зависимость частоты вибрирующей струны: синими точками отмечены значения частоты, красными - мощности, высаживаемой на струну. При мощности 0.76 Вт частота струны падала с 6000 Гц до 1000 Гц и становилась нестабильной. После снятия мощности прогрева струна восстанавливалась до исходного состояния для значений высаживающейся на струну мощности меньше 6 Вт. При больших значениях в материале струны происходили необратимые изменения, и предварительная частота не восстанавливалась.

Оценены характерные времена отклика в вакууме и заданной атмосфере. Для широкоапертурного датчика данное время было определено экспериментально

В 2014 г. была предложена новая модификация разработанного сканера, в которой в качестве мишени предложено использовать вибрирующую струну и

помимо измерения частоты колебаний струны синхронно с ними измерять генерируемые пучком на струне отражения, вторичные частицы/фотоны. Принцип действия предложенного метода представлен на Рис. 12.

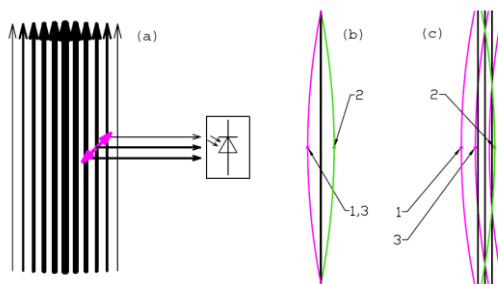


Рис. 12 Принципа действия датчиков вибрирующей струны с резонансной мишенью. На рис. (a) вертикальными линиями представлен пучок с неоднородной плотностью. Производится вычитание измерений в точках 1, 3 и 2 (рис. (b)), позволяющее избавиться от нежелательного фона. На рис. (c) представлена движущаяся вибрирующая струна.

Использованием данного метода можно существенно ускорить процесс сканирования. Это дает возможность, помимо измерения одномерных профилей пучков, восстанавливать также сложные двумерные сечения пучка по набору профилей, соответствующих различным углам сканирования (характерная задача томографии). Тестовые эксперименты такой установки были проведены на фотонных пучках.

Синтез техногенных изотопов может осуществляться также путём облучения мишени потоком нейтронов (как быстрых, так и тепловых). Потоки нейтронов могут быть получены в специальных нейтронных источниках, либо на ускорителях. Таким образом, измерение пространственного распределения нейтронных пучков также представляет собой актуальную и интересную задачу.

Были разработаны специальные датчики для измерения нейтронных пучков. Принцип действия таких датчиков заключается в том, что вибрирующая струна покрывается гадолиниевым покрытием. Сечение захвата тепловых нейтронов наибольшее для некоторых изотопов гадолиния среди всех элементов периодической таблицы и струны с таким покрытием могут служить идеальными поглотителями измеряемых нейтронных пучков.

Предложены два типа нейтронных датчиков вибрирующей струны: миниатюрный датчик малых размеров с диаметром струны приблизительно 10 мкм со слоем гадолиниевого покрытия около 2 мкм толщиной, а также датчик средних размеров с диаметром струны около 100 мкм и слоем покрытия около 10 мкм толщиной. В первом случае в качестве гадолиниевого покрытия с целью увеличения чувствительности датчика следует использовать гадолиний, обогащенный изотопом

^{157}Gd , что позволит захватывать все падающие на струну тепловые нейтроны. Во втором случае из-за большей толщины слоя можно использовать натуральный гадолиний. Произведенные нами оценки показали, что для миниатюрного датчика рабочий диапазон измерений равен $3 \times 10^8 - 3 \times 10^{13}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ для воздуха и $8 \times 10^7 - 8 \times 10^{12}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ для вакуума. Для датчика со средними размерами соответственно: $2 \times 10^{10} - 2 \times 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ для воздуха и $10^9 - 10^{14}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ для вакуума.

Все указанные типы датчиков могут с успехом использоваться для измерения сложных профилей пучков в методах наработки медицинских изотопов, использующих ускорители заряженных частиц. В частности такие измерения были проведены в ННЦА в экспериментальной установке для получения генераторного изотопа ^{99}Mo для $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на линейном инжекторе LUE50 электронного накопителя АРУС.

Датчик с отдельными струнами был использован для измерения профиля протонного пучка с энергией 2.5 МэВ и средним током от 0.01 до 2.8 мА установки Fermilab High Intensity Neutrino Source (HINS). Планируется использование датчика для измерения гало протонного пучка установки Project-X Injector Experiment (PXIE), которая является прообразом мультимегаватт сверхпроводящих протонных ускорителей прикладного назначения с пучками больших размеров.

Широкоапертурный датчик вибрирующей струны обычного типа с длиной струны 80 мм был успешно опробован для измерения протонного пучка с характерными поперечными размерами 30-50 мм ускорительного комплекса КОМАС. Данный ускорительный комплекс предназначен для применения протонных пучков с энергией 20 МэВ и 100 МэВ с помощью десяти пучковых выводов в различных прикладных исследованиях, в том числе для производства радиоизотопов. Предполагается, что исследования по измерению профилей протонных пучков с помощью датчиков вибрирующей струны будут продолжены и после окончательного ввода комплекса в эксплуатацию и эти датчики будут применяться как полезное диагностическое средство, в том числе и для оптимизации процессов производства радиоизотопов.

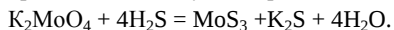
Четвертая глава диссертации посвящена восстановлению мишени после облучения и контролю радиохимической чистоты. Была создана система для восстановления Mo из щелочного раствора после экстракции $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Восстановление производилось тремя этапами: химическое восстановление облученной мишени до MoS_3 , высокотемпературное восстановление MoS_3 до MoO_3 и затем MoO_3 до Mo .

Для химического восстановления облученной мишени до MoS_3 был сконструирован специальный вытяжной шкаф, в котором в щелочной раствор подавался сероводород с 3-5 кратным избытком. Для получения сероводорода в шкаф была помещена колба с сульфидом железа FeS , в которую автоматически подавалась соляная кислота. Колба с сульфидом железа находилась в водяной бане с нагревателем, где поддерживалась стабильная температура 70°C . При данной температуре после подачи 20-30% соляной кислоты на сульфид железа происходит

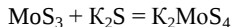
реакция $\text{FeS} + 2\text{HCl} = \text{FeCl}_2 + \text{H}_2\text{S}\uparrow$. Далее сероводород проходил через четыре барботера с соляной кислотой для очистки от соединений мышьяка.

Был разработан и изготовлен блок управления для автоматической подачи соляной кислоты в колбу с FeS и терморегулирования водяной бани.

После прохождения сероводорода через барботер с щелочным раствором происходила следующая реакция:



В щелочной среде осадок сульфида молибдена не выпадал, так как образовался растворимый тиомолибдат калия:



Первоначально, при подаче H_2S , щелочной раствор становился голубоватым, затем принимал желто-оранжевую окраску. Процесс велся до образования глубокого морковного цвета и прекращения образования H_2S . Процесс сульфидирования проводился при непрерывном перемешивании и использованием барботера.

После прекращения процесса сульфидирования щелочной раствор нейтрализовался соляной кислотой для выпадения осадка MoS_3 . Для этого в раствор постепенно покапельно подавался HCl и перемешивался стеклянной палочкой. Процесс протекал по следующим реакциям:



Соляная кислота подавалась до полной нейтрализации раствора, т.е. до прекращения газовой выделении при подаче HCl . При этом, постепенно образовывался рыхлый коричнево-черный осадок MoO_3 . После оседания осадка раствор полностью осветлялся.

Осадок отмывался дистиллированной водой от ионов хлора. Промывка осадка проводилась деконцентрацией раствора.

Для восстановления MoS_3 до MoO_3 и MoO_3 до порошкообразного металлического Mo была сконструирована герметичная высокотемпературная лабораторная печь со следующими параметрами: максимальная температура – 1200 °С, мощность – 1.5 кВт, вид теплоизоляции – волокно из оксида алюминия, размеры рабочего пространства; длина – 400 мм, диаметр – 20 мм, вид термопары – хромель-алюмель (К-Туре). Печь была оснащена температурным контроллером.

Для проведения восстановления в высокотемпературной печи была разработана специальная экспериментальная установка, изображенная на Рис. 13.

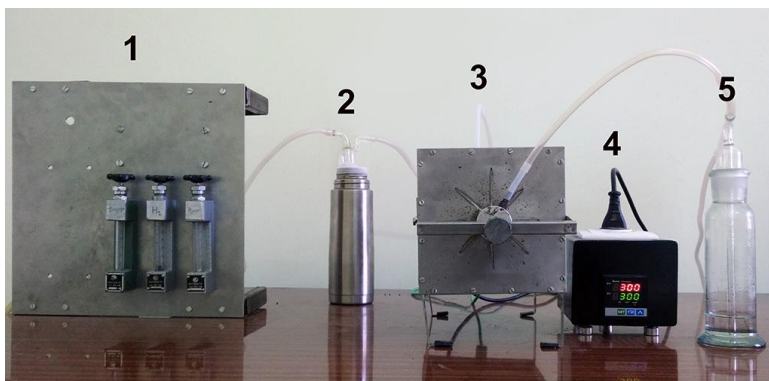
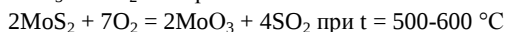


Рис. 13 Экспериментальная установка для восстановления MoS_3 до MoO_3 и MoO_3 до Mo : 1–смеситель с потокометрами газа, 2–ловушка, охлаждаемая жидким азотом для нейтрализации влажности газа, входящего в печь, 3–высокотемпературная печь, 4–блок управления высокотемпературной печи, 5–барботер для дополнительного контроля потока выходящего газа из печи.

Во втором этапе промытый осадок прокаливался в печи с подачей воздуха при двух режимах:

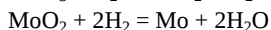
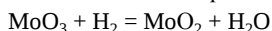


В результате был получен пек бело-серого цвета который впоследствии измельчался до порошкообразного состояния (см. Рис. 14).



Рис. 14 Результат восстановления сульфида молибдена MoS_3 до оксида молибдена MoO_3 .

Для восстановления MoO_3 до Mo порошок MoO_3 прокаливался в печи при подачи потока водорода в двух последующих режимах:



В данном эксперименте при прокаливании 1.52 г порошка MoO_3 получен порошок металлического Mo весом 1.1 г. Результат восстановления оксида молибдена до металлического Mo водородом изображен на Рис. 15.

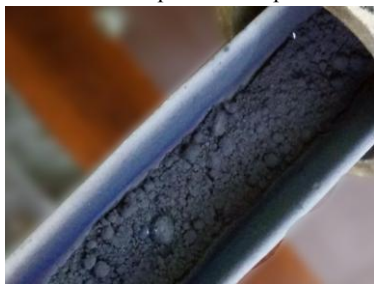


Рис. 15 Результат восстановления оксида молибдена MoO_3 до металлического Mo водородом.

Для контроля радиохимической чистотой полученных медицинских изотопов материала был изготовлен специальный гамма—сканер, общий вид которого изображен на Рис. 16.

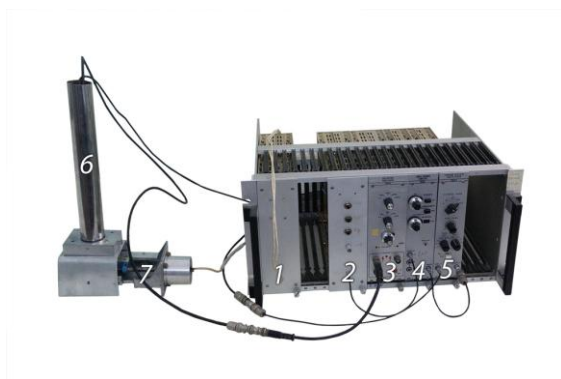


Рис. 16 Общий вид гамма-сканера: 1 – источник питания, 2 – блок управления, 3 – источник высоковольтного питания, 4 – дискриминатор, 5 – усилитель, 6 – сцинтилляционный счетчик, 7 – шаговый двигатель с подложкой для хроматографической бумаги.

Для осуществления сканирования измеряется активность вдоль хроматографической бумаги и строится график распределения активности соответствующей спектральной линии измеряемого изотопа.

Осуществлено исследование радиохимической чистоты пертехнетата натрия со следующими параметрами сканирования: шаг сканирования 3мм, время сканирования каждого шага 300 с, количество шагов 13. Результаты сканирования приведены на Рис. 17.

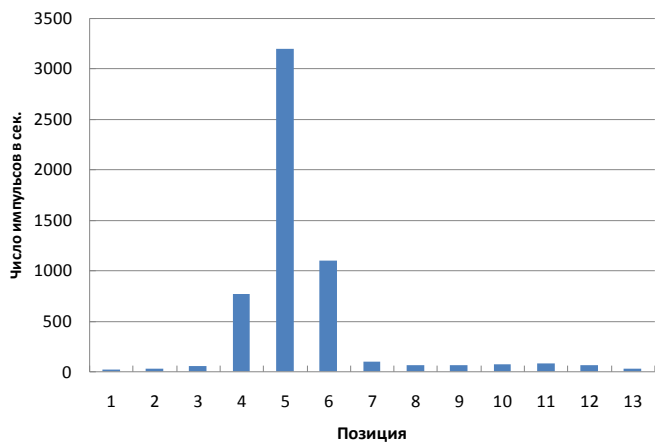


Рис. 17 Результаты сканирования пертехнетата натрия.

По произведенному сканированию видно, что ионная часть пертехнетата скопилась в 5-ой позиции хроматографической бумаги. Атомарная составляющая относительно мала по сравнению с ионной частью и наблюдается в позициях 10 и 11 хроматографической бумаги только при логарифмическом масштабе.

В заключении перечислены следующие основные результаты, полученные в диссертационной работе.

1. Разработана новая технология изготовления и лазерной обработки мишени из порошка молибдена для увеличения механической прочности и теплопроводности.
2. Разработана новая технология криогенного охлаждения мишени, что позволит значительно увеличить интенсивность пучка при облучении и, соответственно, эффективность наработки изотопа;
3. Методом конечных элементов программой ANSYS впервые проведены расчет и моделирование тепловой нагрузки на мишень при различных профилях пучка, режимах охлаждения и материалах мишенного диска. Данные расчеты позволят выбрать оптимальные параметры пучка и материал мишенного диска.
4. Разработана технология неразрушающего контроля профиля протонного пучка с помощью датчика на вибрирующей струне, что позволит поддерживать оптимальные параметры профиля пучка в процессе облучения.
5. Разработаны разные модификации датчика на базе вибрирующей струны, которые могут быть использованы для контроля профиля пучка при производстве медицинских изотопов. В частности, разработаны датчики для измерения пучков с большой апертурой и нейтронных пучков.

Определены основные характеристики таких датчиков, в том числе их зависимость от параметров внешней среды.

6. Разработан и испытан комплекс для восстановления растворенной мишени Мо после облучения из щелочного раствора после экстракции наработанного изотопа ^{99m}Tc . Комплекс восстановления включает в себя систему с автоматизированным управлением для восстановления MoS_3 из щелочного раствора и систему для нескольких этапов восстановления до металлического Мо.
7. Разработана и создана система контроля радиохимической чистоты полученного пертехнетата.

Ценность проведенных работ обусловлена тем, что разработанные системы теоретически обоснованы, экспериментально опробованы и могут быть успешно применены для производства медицинского изотопа ^{99m}Tc на циклотроне С18. Датчики вибрирующей струны успешно прошли испытания на разных ускорителях с электронными и протонными пучками.

Результаты диссертационной работы докладывались на Международных Конференциях, опубликованы в журналах PRST-AB, NIM, IJEST и Известия НАН Армении.

Публикации, вошедшие в диссертацию

1. Г.С. Арутюнян, Теоретическое обоснование возможности криогенного охлаждения твердотельной мишени при облучении пучком протонов циклотрона C18. Известия НАН Армении, Физика, 2016; 51(2): pp. 139-146.
2. S.G.Arutunian, M.Chung, G.S.Harutyunyan, A.V.Margaryan, E.G.Lazareva, L.M.Lazarev, L.A.Shahinyan. Fast resonant target vibrating wire scanner for photon beam, Review of Scientific Instruments, 2016; 87: pp. 023108/1-8.
3. S.G.Arutunian, J.Bergoz, M.Chung, G.S.Harutyunyan, E.G.Lazareva. Thermal neutron flux monitors based on vibrating wire. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 2015; 797: pp. 37-43.
4. A.Avetisyan, R. Avagyan, I. Kerobyan, R. Dallakyan, G. Harutyunyan, A. Melkonyan. Development of medicine-intended isotope production technologies at Yerevan Physics Institute. In European Physical J. Web of Conferences; 2015, 93, pp. 08001/1-5.
5. Avetisyan, R. Dallakyan, R. Sargsyan, A. Melkonyan, M. Mkrtchyan, G. Harutyunyan, N. Dobrovolsky. The powdered molybdenum target preparation technology for ^{99m}Tc production on C18 cyclotron. Inter. J. Engin. Science and Innovative Technology, 2015; 4(3): pp. 37-44.
6. Г.С.Арутюнян. Гамма—Сканер для контроля радиохимической чистоты медицинских изотопов. Известия НАН Армении, Физика, 2015; 50(3): pp. 384-389.
7. S.G.Arutunian, A.E.Avetisyan, M.M.Davtyan, G.S.Harutyunyan, I.E.Vasiniuk, M.Chung, V.Scarpine. Large aperture vibrating wire monitor with two mechanically coupled wires for beam halo measurements. Physical Review Special Topics – Accelerators and Beams, 2014; 17: pp. 032802/1-11.
8. S.G.Arutunian, I.E.Vasiniuk, G.Decker, G.S.Harutyunyan. Heat Coupling In Multi-Wire Vibrating Wire Monitor. In Proceedings of RuPAC 2008 (2008; Zvenigorod, Russia) p. 247-249.

**Արագացուցչային մեթոդներով Տեխնեցիում 99մ ստանալու համար
թիրախի պատրաստման և մշակման ու փնջի վերահսկման տեխնոլոգիաները
ԱՍՓՈՓԱԳԻՐ**

Վերջին տարիներին բժշկական իզոտոպների ստացման համար ակտիվորեն քննարկվում են արագացուցչային մեթոդները, որոնք ունեն մի շարք առավելություններ ներկայումս օգտագործվող ռեակտորային մեթոդների հանդեպ: Այս խնդրի լուծման համար ամենահարմարը պրոտոնային ցիկլոտրոն տեսակի արագացուցիչների օգտագործումն է, որը վերջերս տեղադրվել է ԱԱԳԼ հարևանությամբ և կարող է օգտագործվել բժշկության մեջ ամենալայն կիրառումն ունեցող ^{99m}Tc տեխնեցիում տեսակի իզոտոպի ստացման համար: Այս մեթոդի կիրառման համար լուծվել են մի շարք տեխնիկական խնդիրներ՝ թիրախի պատրաստման և մակերեսի մշակման, ճառագայթման ընթացքում թիրախի սառեցման, որը կավելացնի ճառագայթման արտադրողականությունը, սառեցման նոր՝ կրիոգեն մեթոդի կիրառման հնարավորության ուսումնասիրությունը, պրոտոնային փնջի լայնական չափսերի չափման նոր մեթոդի կիրառումը, ճառագայթումից հետո թիրախի թանկարժեք նյութի՝ հարստացված ^{100}Mo իզոտոպի վերականգնման տեխնոլոգիան և մի շարք այլ տեխնիկական և տեխնոլոգիական խնդիրներ:

Այս աշխատանքում մշակվել և ստեղծվել է Mo մետաղական փոշուց պինդամրմնային տափօղակի տեսքով թիրախի պատրաստման տեխնոլոգիան, մակերեսի լազերային մշակման միջոցով: Կատարվել են հատուկ չափումներ ստացված թիրախի որակը ստուգելու համար:

Սառեցման համար հաշվարկվել է, նախագծվել, ստեղծվել և փորձարկվել հեղուկ ազոտով սառեցման արդյունավետ համակարգ: Որակական փորձը ցույց տվեց այս մեթոդի կիրառելիության հնարավորությունը: Սառեցման այս մեթոդը թույլ կտա մոտ երկու անգամ ավելի ինտենսիվ պրոտոնային փնջով կատարել ճառագայթումը, որն էլ իր հերթին կավելացնի ^{99m}Tc ստացման արդյունավետությունը:

Փնջի լայնական չափսերի չափման համար ստեղծվել է նոր սկզբունքով աշխատող սարք՝ հիմնված տատանվող լարի տատանման հաճախության չափման վրա:

Վերջնական տարրերի մեթոդով ANSYS ծրագրով կատարվել է ճառագայթման ժամանակ թիրախի ծավալում ջերմաֆիզիկական երևույթների հաշվարկ փնջի տարբեր ընդլայնական չափսերի համար: Դա թույլ կտա իրական ճառագայթման ընթացքում ընտրել ջերմային տեսակետից փնջի առավել արդյունավետ չափսերը:

Թիրախի Mo նյութի բազմակի օգտագործման համար մշակվել, ստեղծվել և փորձարկվել է քիմիական մեթոդներով գործող մի ամբողջ համալիր: Հիմնային լուծույթից քիմիական մեթոդով վերականգնվում է MoS_3 միացությունը: Այնուհետև երկու փուլով այն վեր է ածվում MoO_3 և մետաղական Mo: Վերականգնման գործակիցը մոտ է 95%, վերականգնված մետաղական մոլիբդենի որակը բարձր է:

Ստացված ^{99m}Tc ռադիոքիմիական մաքրության ստուգման համար նախագծվել, ստեղծվել և փորձարկվել է համակարգչին միացած զամմասքաներ: Ռեակտորային մեթոդով ստացված ^{99m}Tc համար կատարվել է ռադիոքիմիական մաքրության չափում, որը ցույց է տվել սարքի լրիվ աշխատունակությունը:

Բոլոր վերոհիշյալ սարքերն ու համալիրները փորձարկված են և ցույց են տվել լիարժեք աշխատունակություն, պատրաստ են ցիկլոտրոնի փնջով իրական ճառագայթում իրականացնելուց հետո կատարել ամբողջ տեխնոլոգիական շղթան:

Accelerator based methods of Technetium^{99m} production – target preparation and processing and beam monitoring technologies

SUMMARY

Within the last decade accelerator-based methods of medical isotopes production are under active discussion. These have a number of advantages over currently used reactor-based production methods. The most convenient way of production is by exploiting the proton cyclotron, which was installed near ANSL and can be exploited for ^{99m}Tc isotope production, commonly used in medicine. A few technical challenges were solved for the application of this method: target preparation and surface processing using laser beam, investigation of the possibility of a new cryogenic method for cooling the target during irradiation, investigation of proton beam profile measurement technique using vibrating wire scanner, the opportunity of recovery of expensive enriched bi-product of the irradiation - Mo¹⁰⁰, and Tc extraction after irradiation, and a number of other technical and technological problems.

In the present work R&D of technology of disc target preparation from metallic Mo powder has been performed. To improve its mechanical strength and thermo conductivity a laser-beam processing of its surface has been applied. A quality assessment of the produced target has been done.

For target cooling during irradiation a special optimized system using liquid nitrogen has been calculated, projected, assembled and tested. The qualitative results of the test-experiment showed the applicability of this method. It will allow to double the proton beam intensity for the irradiation, which will increase the ^{99m}Tc production efficiency.

For beam profile monitoring a new device has been assembled, based on the measurement of vibrating wire oscillation frequency.

To calculate the thermophysical processes inside the target during irradiation the finite element method has been applied using the ANSYS software. Results were obtained for different beam profile widths, which will allow choosing optimal beam intensity and transversal distribution on the target surface from the thermal point of view.

For recycled use of very expensive enriched ¹⁰⁰Mo target material complex equipment has been designed and assembled, allowing to recover Mo from solution using chemical technologies. In the first step the MoS₃ is being recovered from base solution. Then in two steps MoS₃ is transformed to MoO₃ and then to metallic Mo. The recovering

efficiency is ~95% and quality of recovered Mo is quite high. For last two steps a high temperature oven has been installed providing up to 1200 °C.

To check the radiochemical purity of produced ^{99m}Tc a computer-driven gamma scanner has been projected, assembled and tested. For testing a ^{99m}Tc from reactor-based Mo/Tc generator has been used, to prove the usability of the gamma scanner.

All of the above-mentioned devices and systems were tested and have shown full operability and high efficiency, and are ready to be exploited in the full technological chain with target irradiation under proton beam of the cyclotron.