

Национальная научная лаборатория им. А.И.Алиханяна
(ЕрФИ)

Геворг Суренович Арутюнян

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

ДИССЕРТАЦИЯ

На соискание ученой степени кандидата технических наук А04,16

Научный руководитель:

Альберт Эдуардович Аветисян

ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение	4
Глава 1. Методы получения медицинских изотопов	10
§1. Медицинские изотопы и их применения.	10
§2. Реакторный метод получения медицинских изотопов	13
§3. Ускорительный метод получения медицинских изотопов: электроны	16
§4. Ускорительный метод получения медицинских изотопов: протоны	19
§5. Ускорительные методы получения изотопа ^{99m}Tc	23
Глава 2. Технология изготовления и облучения мишеней для получения ^{99m}Tc на циклотроне C18	31
§1. Разработка методики изготовления молибденовых мишеней с лазерной обработкой поверхности	34
§2. Теплофизический расчет облучения мишени	45
§3. Криогенное охлаждение мишенного модуля	53
Глава 3. Измерение профиля пучка – неразрушающий метод сканирования электронных, протонных и нейтронных пучков	57
§1. Струнный сканер вибрирующей струны: основные типы и параметры	59
§2. Влияние внешней среды на параметры струнных сканеров	64
§3. Модификации датчика вибрирующей струны	68
§4. Измерение нейтронных пучков с помощью струны с гадолиниевым покрытием	79
Глава 4. Восстановление мишени после облучения и контроль радиохимической чистоты	85
§1. Химическое восстановление облученной мишени до MoS_3	86

§2. Восстановление MoS_3 до MoO_3	93
§3. Восстановление MoO_3 до Mo	95
§4. Контроль радиохимической чистоты с помощью гамма-сканера	97
Заключение	104
Приложения	106
Литература	113

ВВЕДЕНИЕ

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.

Уникальность изотопной диагностики заключается в ее точности, надежности, возможности частого применения, а главное, способности диагностировать заболевание уже на ранней стадии. Такие радионуклиды, как ^{201}Tl и ^{82}Rb , используются для получения изображения сердца, другие (например, $^{99\text{m}}\text{Tc}$) используются при сканировании мозга, костных тканей, а также для диагностики таких заболеваний, как рак, болезнь Альцгеймера и др. При высокоэффективной изотопной диагностике, позволяющей определить динамику биохимических процессов во всех участках организма, используется ^{11}C , ^{13}N , ^{18}F . Ряд изотопов (^{103}Pd , ^{192}Ir) уже применяют для лечения раковых заболеваний, а некоторые изотопы можно использовать как анальгетики и стерилизаторы. Более подробно применение медицинских изотопов описано в §1, Гл. 1 настоящей диссертации.

Радиоактивные изотопы на современном этапе в основном нарабатываются в промышленных и исследовательских ядерных реакторах, специально сконструированных для этих целей. В последнее время началась активная реконструкция так называемых «военных» реакторов с целью расширения производства на них «мирных» изотопов (как стабильных, так и радиоактивных), в первую очередь – медицинского назначения. Изотопы можно производить и на некоторых типах реакторов, работающих на атомных электростанциях. В частности, для этой цели подходят каналные реакторы типа РБМК (Реактор Большой Мощности Канальный). Ключевым преимуществом реализации радиационных технологий в каналных реакторах РБМК является их конструктивная особенность, позволяющая осуществлять загрузку и выгрузку облучаемых образцов и изделий на работающем реакторе в любой момент времени в многочисленных каналах, обеспечивая поддержание на высоком уровне всех условий ядерной иррадиационной безопасности. В этом отношении РБМК выгодно отличается от корпусных реакторов типа ВВЭР (Водо-Водяной Энергетический Реактор), где реализация радиационных технологий ограничена условиями эксплуатации реактора. Облученные в нейтронном потоке реактора мишени направляются на специализированные предприятия для радиохимической переработки. Целевые радионуклиды выделяются в элементарном состоянии или в виде растворов неорганических соединений, которые в дальнейшем используются для приготовления радиофармпрепаратов, меченных органических соединений или источников ионизирующих излучений. Таким способом производится широкий ряд радионуклидов: ^{99}Mo ($^{99\text{m}}\text{Tc}$), ^{125}I , ^{35}S , ^{45}Ca , ^{51}Cr , ^{86}Rb , ^{124}Sb , ^{145}Sm , ^{153}Gd , ^{203}Hg . Нарботка радионуклидов осуществляется в герметичных блок-контейнерах, содержащих ампулы со стартовыми веществами. Дочерний изотоп $^{99\text{m}}\text{Tc}$, образующийся при распаде

^{99}Mo , извлекается как сорбционным методом, так и на радиохимической установке по экстракционной технологии (централизованном генераторе) и в виде препарата "Раствор натрия пертехнетата" доставляется в клиники для проведения радиодиагностических исследований. На основе этого препарата непосредственно перед проведением радиодиагностических исследований, готовят радиофармпрепараты, такие как "Пирфотекс, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ "; "Бромезида, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ "; "Цитратех, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ". Третьим типом реакторов, используемым для наработки радионуклидов, являются жидкосолевые ядерные реакторы. На них, в частности, производятся «медицинские» радиоактивные изотопы ^{99}Mo . Более подробно методы получения медицинских радиоизотопов в реакторах описаны в §2, Гл. 1 настоящей диссертации.

Многие радионуклиды синтезируют на ускорителях протонов и тяжелых ионов, например, на циклотронах. На циклотронах реализован комплекс по производству радиоактивных изотопов ^{123}I , ^{18}F , ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{81}Rb , ^{67}Ga , ^{111}In , ^{201}Tl и радиофармпрепаратов на их основе.

В настоящее время циклотроны внедряются в медицину не только как производители радионуклидов и радиофармпрепаратов, но и как источники протонов и высокоэнергетических нейтронов. Протонные пучки, например, применяются для облучения внутриглазных опухолей. Тем самым возникает возможность осуществления одного из перспективных методов лечения онкологических больных - лучевой терапии злокачественных опухолей пучками протонов. Лечение меланомы глаза протонными пучками может считаться одним из наиболее успешных методов лечения рака.

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 и 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.

Более подробно ускорительные методы получения медицинских радиоизотопов описаны в §3 и §4, Гл. 1 настоящей диссертации.

Цели данной работы

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

Работа состоит из четырех глав.

В первой главе описаны основные методы получения изотопов и новые принципы их получения на циклотронах.

Во второй главе описаны проблемы изготовления мишеней из порошкообразного молибдена, приведены разработанные и внедренные методы лазерной обработки с целью повышения механической прочности мишени, произведены теплофизические расчеты облучения мишени с помощью решения уравнений теплопроводности методом конечных элементов, исследованы возможности криогенного охлаждения мишени, приведены результаты эксперимента по криогенному охлаждению мишени.

В третьей главе приведены результаты разработки и внедрения методик неразрушающего контроля профиля пучка с помощью различных модификаций сканеров и мониторов на базе вибрирующих струн. Описаны применения данных датчиков для измерения пучков различной природы, в том числе нейтронных.

В четвертой главе приведены результаты разработки методики восстановления молибдена после его облучения и экстракции из него технеция, описана созданная установка по восстановлению молибдена и результаты пробных процедур по восстановлению, описаны системы радиохимического контроля конечного продукта – пертехнетата ^{99m}Tc .

В заключении обобщены результаты, приведенные в четырех главах.

ГЛАВА 1. МЕТОДЫ ПОЛУЧЕНИЯ МЕДИЦИНСКИХ ИЗОТОПОВ

§1. Медицинские изотопы и их применения.

Более 10000 госпиталей во всем мире используют медицинские радиоизотопы [1] 90 % которых используются в диагностических целях. Наиболее распространенный радиоизотоп для диагностики ^{99m}Tc - 40-45 млн. процедур во всем мире (80 % всехпроцедур ядерной медицины). Общий объем производства радиоизотопов в 2012 г. достигал около 4.8 млрд. долларов (80 % - медицинские радиоизотопы). Планируется, что эта цифра в 2017 г. возрастет до 8 млрд. долларов [2,3].

Первые попытки использования радиоизотопов в медицинской диагностике относятся к середине 20-х годов прошлого века, когда Джордж Де Хевеши (Нобелевская премия 1943 г.) провёл первые эксперименты на мышах по метаболизму с ^{210}Bi . В 1927 г. Блумгарт и Вайсс применили газ радон для оценки геодинамики у больных с сердечной недостаточностью [4].

Однако, началом возникновения ядерной медицины можно считать 50-е годы прошлого столетия, когда изотоп ^{131}I начал широко использоваться для диагностики и лечения заболеваний щитовидной железы.

Сегодня медицинские изотопы применяются в различных областях научной и практической медицины - онкологии, кардиологии, урологии и нефрологии, пульмонологии, эндокринологии, травматологии, неврологии и нейрохирургии, педиатрии, аллергологии, гематологии, клинической иммунологии и др.

Медицинские изотопы и соответствующие радиофармпрепараты (РФП) на их основе с точки зрения области их применения классифицируют по отдельным группам как диагностические и терапевтические (см. Рис. 1).



Рис. 1 Классификация медицинских изотопов: ПЭТ - позитронно-эмиссионная томография, ОФЭКТ - однофотонная эмиссионная компьютерная томография, ЛПЭ - линейная передача энергии, ЭЗ - электронный захват, ВЭК - внутренняя электронная конверсия.

В РФП диагностического назначения радионуклид является информационным носителем, излучение которого, проникающее за пределы организма, регистрируется внешними детекторами. При этом в зависимости от типа излучения радионуклиды диагностического назначения могут быть отнесены к двум группам:

- Радионуклиды для **ОФЭКТ** (SPECT в английской аббревиатуре – Single Photon Emission Computer Tomography) – однофотонная эмиссионная компьютерная томография; к оптимальным радионуклидам для ОФЭКТ относятся γ -излучатели с энергией γ -квантов в пределах 100-200 кэВ и периодами полураспада от нескольких минут до нескольких дней.
- Радионуклиды для **ПЭТ** (PET) – позитронно-эмиссионная томография – β^+ – излучатели с периодами полураспада от нескольких секунд до нескольких часов.

В РФП терапевтического назначения радионуклид является основным лечебным началом, позволяющим локализовать лечебную дозу излучения непосредственно в органе-мишени или, иногда, в пораженных клетках, и, соответственно, обеспечить минимальное облучение окружающих здоровых клеток органов и тканей. В зависимости от характера и локализации патологического процесса для радиотерапии используют:

- β^- излучатели с энергиями β^- частиц в области 200-2000 кэВ;
- α -излучатели с высокой линейной передачей энергии (ЛПЭ ~100 кэВ/мкм) и коротким пробегом частиц (50-100 мкм);
- радионуклиды, распадающиеся электронным захватом (ЭЗ) или внутренней электронной конверсией (ВЭК).

Подавляющее большинство диагностических процедур (~80%) при помощи техники ОФЭКТ выполняется в течение последних 30 лет с препаратами ^{99m}Tc , который называют «рабочей лошадью ядерной медицины». Широко используются ^{123}I , ^{201}Tl , ^{111}In , в отдельных случаях при

необходимости применяются диагностические методики с ^{51}Cr , ^{67}Ga , $^{81\text{m}}\text{Kr}$, ^{131}I и др. Среди позитрон-излучающих радионуклидов в основном используются ^{11}C , ^{13}N , ^{15}O и ^{18}F .

Хорошее представление о разнообразии других изотопов, получаемых в реакторах и на циклотронах и используемых в медицине дают Табл. 11 и Табл. 12 приведенные в Приложении 1 [1].

В мире ведутся работы по разработке циклотронного метода получения изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$. В данном методе производство происходит без промежуточного изотопа ^{99}Mo . При данном подходе есть ряд технических сложностей, которые должны быть решены: использование порошкообразного Mo для излучения, восстановление дорогого ^{100}Mo для многократного излучения, создание мишенного модуля с интенсивным охлаждением.

Разработана технология получения $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на протонном пучке, которая может применяться на циклотроне ^{18}C , установленном в Центре Производства Изотопов, в Армении. Изотоп $^{99\text{m}}\text{Tc}$ можно производить, используя параллельный пучок на циклотроне. Технология производства состоит из изготовления мишени с криогенным охлаждением и восстановления мишени после облучения для многократного использования. С целью повышения эффективности использования пучка следует определять также оптимальные условия согласования тока и профиля пучка с параметрами мишени.

§2. Реакторный метод получения медицинских изотопов

Для получения радионуклидов с помощью реакторов используются тепловые и быстрые нейтроны с интенсивностями от 10^{12} до $2 \cdot 10^{15}$ нейтр./(

$\text{см}^2 \cdot \text{с}$), которые инициируют различные реакции (n, γ) для получения ^{24}Na , ^{32}P , ^{64}Cu , ^{82}Br , ^{86}Rb , ^{90}Y , $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{198}Au из природного сырья; ^{42}K , ^{51}Cr , ^{59}Fe , $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{113}\text{Sn}/^{113\text{m}}\text{In}$, ^{169}Yb , $^{191}\text{Os}/^{191\text{m}}\text{Ir}$, ^{197}Hg из изотопно-обогащенных мишеней; (n, γ) с последующим бета-распадом промежуточного нуклида $(^A_Z\text{X}(n, \gamma)^{A+1}_Z\text{X} \rightarrow ^{A+1}_{Z+1}\text{Y})$ для получения ^{125}I , ^{131}I , ^{131}Cs , ^{199}Au , пороговые реакции с вылетом заряженных частиц - (n, p) , (n, γ) , для получения ^{32}P , ^{33}P , ^{35}S , ^{58}Co , ^3H , ^{36}Cl ; реакции двойного захвата нейтронов (n, γ) , (n, γ) для получения $^{66}\text{Ni}/^{66}\text{Cu}$, $^{109}\text{Cd}/^{109\text{m}}\text{Ag}$; ядерные реакции на заряженных частицах для получения ^{18}F , ^{28}Mg ; реакции деления урана для получения $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I , $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$, ^{133}Xe и других продуктов деления [5]. Практическая реализация перечисленных способов получения радионуклидов на реакторе связана с выбором материала мишени, с учетом сечений активации первичных нуклидов и выгорания нуклидов-продуктов, самоэкранирования облучаемых образцов и уменьшения в них плотности нейтронного потока. В качестве примера можно рассмотреть проблему получения ^{99}Mo для генератора $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Сечение реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ на тепловых нейтронах невелико и составляет 0.13 барна. Однако, для эпитепмальных нейтронов (с энергией свыше 0.4 эВ) сечение увеличивается до 11.6 барна. Вследствие этого выбор места облучения в активной зоне реактора может существенно повысить активацию ^{98}Mo . В большинстве случаев эффективное сечение составляет около 0.5 барна. В некоторых реакторах удастся реализовать эффективное сечение, равное 0.8 барна. В результате при облучении молибдена в потоке 10^{15} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ в течение 5 суток удельная активность ^{99}Mo может достигать 14.5 Ки/г для природного и около 60 Ки/г для 100% ^{98}Mo .

В Табл. 13 Приложения 2 приведены реакторные радионуклиды наиболее часто применяемые в ядерной медицине [6].

Для реакторного метода получения изотопов типична реакция, вызываемая тепловыми нейтронами – (n, γ) [4]. Образующийся при этом радионуклид является изотопом материнского элемента, а последний, соответственно, – стабильным носителем своего радиоизотопа. При нормальных условиях радиоизотоп и его стабильный носитель находятся в конечном препарате в одинаковом химическом состоянии. Такие препараты особенно целесообразно использовать при изучении действия или поведения макроколичеств вещества, меченного для удобства исследований. Высокие потоки, достигаемые в реакторах (плотность потока нейтронов может быть до 10^{14} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ и даже выше), в целом, обеспечивают значительно более высокие сечения активации тепловыми нейтронами по сравнению с заряженными частицами, быстрыми нейтронами или фотонами, а также большие объемы для облучения с относительно равномерным распределением плотности потока тепловых нейтронов позволяют обеспечивать на реакторе высокую производительность получения радионуклидов, в том числе тех, которые для достаточного накопления требуют длительного облучения (недели, месяцы и более). Стоимость изотопов, получаемых на реакторе, в общем, ниже, чем на ускорителях.

Недостаток реакторного метода получения изотопов заключается в образовании большого количества неиспользуемых радиоактивных отходов. Так, для производства радионуклида $^{99\text{m}}\text{Tc}$, который является дочерним продуктом β^- - распада материнского изотопа ^{99}Mo используется реакция деления урана – $^{235}\text{U}(n, f)^{99}\text{Mo}$ (сечение 582.6 барн) при которой на 1 Ки ^{99}Mo образуется 50 Ки отходов [4]. Необходимость в последующей переработке и утилизации отходов, наряду с операцией отделения от них урана для повторного использования, приводит к большим экологическим проблемам. К недостаткам реакторного метода производства изотопов следует отнести

также вероятность длительных аварийных или плановых отключений реактора [7].

§3. Ускорительный метод получения медицинских изотопов: электроны

В основе метода получения изотопов с помощью электронных пучков лежит использование тормозного излучения электронов ($E_\gamma > 8$ МэВ) достаточно большой интенсивности ($> 10^3$ Вт/см²). Метод используется для безопасного и экологически чистого производства ряда изотопов для ядерной медицины [8]. Типичные значения энергии электронов 30-50 МэВ. Преимуществом данного метода является большая длина поглощения получаемых жестких фотонов, т.е. большая длина зоны резонансного взаимодействия жестких фотонов с ядрами вещества мишени. Именно это позволяет в определенных случаях получать большую эффективность выхода радиоизотопов по сравнению с использованием пучков тяжелых частиц, которые из-за больших ионизационных потерь быстро теряют свою энергию и выходят из указанной области резонансного взаимодействия. Типичные получаемые радиоизотопы; ^{47}Sc ($^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$, 3.35 дней), ^{67}Cu ($^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$, 61.8 часов), ^{57}Co ($^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$, $^{58}\text{Ni}(\gamma, p)^{57}\text{Co}$, 270 дней), ^{111}In ($^{112}\text{Sn}(\gamma, p)^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$, 2.83 дней)

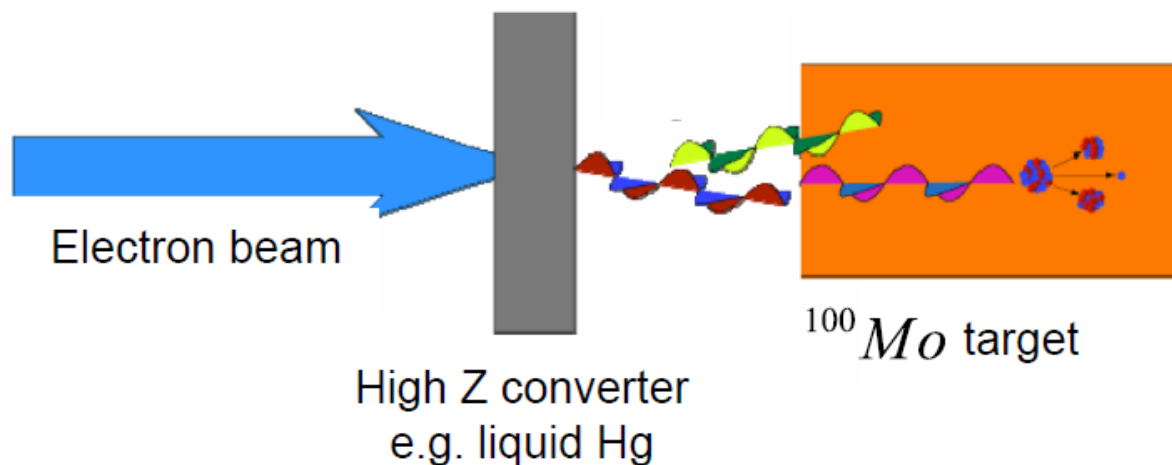


Рис. 2. Схема получения изотопа ⁹⁹Mo на линейном ускорителе электронов.

На электронном ускорителе TRIUMFe-LINAC, 500 кВт, 50 МэВ, с помощью излучателя на базе тормозного излучения (реакция ¹⁰⁰Mo(γ,n)⁹⁹Mo) получено производство ⁹⁹Mo с общим заключением о том, что линейный ускоритель электронов может быть хорошей альтернативой реакторному производству ⁹⁹Mo [9].

Модификация ускорителя Cornell LINAC - 0.5 МВт, 1.3 ГГц, стоимостью около 125 млн. долл. США [10], используется для производства некоторых изотопов реакции с помощью реакций (γ,n) или (γ,p). Используемые технологии имеют достаточно большой выход радиоизотопов и предоставляют более простой принцип химического выделения изотопов из матрицы-мишени, например, для ⁶⁷Cu (см. обсуждение экспериментов на ускорителе Laboratory at Rensselaer Polytechnic Institute, в которых облучались шайбы из цинка; энергия электронов 55 МэВ, ток 4 мкА [11]).

Большой объем информации о производстве радиоизотопов с помощью электронных пучков приведен в [12] и [13]. В частности

обсуждены методики получения генератора изотопа ^{99}Mo для получения изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$ с помощью протонного циклотрона C18/18 и приведены результаты предварительных исследований по получению изотопов $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ^{123}I с помощью электронного пучка инжектора Ереванского синхротрона на энергию до 75 МэВ.

Для производства радиоизотопов используются также сверхпроводящие линейные ускорители электронов [14], в которых более эффективными являются трансформация ВЧ-мощности в энергию электронного пучка и получение высоких градиентов ускорения > 10 МэВ/м. Это делает ускоритель более компактным. Такие ускорители, изготавливаемые "под ключ", т.е. пригодные к немедленному использованию, производит фирма NIOWAVE. Характерные параметры таких ускорителей:

Энергия электронов пучка - 0.5...40 МэВ

Мощность электронного пучка 1 Вт ... 100 кВт

Длина электронного сгустка - около 5 пс.

В качестве конверторов электронов в тормозное излучение используются этетки свинца и висмута, обладающими высоким атомным числом, и хорошими термомеханическими свойствами. Оптимальная толщина конвертора определяется энергией электронов. Табл. 1 дает представление об используемых материалах мишеней, последующих реакций фотопоглощения для получения нужного изотопа, времени жизни радиоизотопа и краткого описания области применения:

Табл. 1 Примеры изотопов получаемых на электронных ускорителях

Мишень	Реакция	Время полураспада	Применение
^{68}Zn	$^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$	61 ч	Терапевтический бета и гамма эмиттеры
^{225}Ac	$^{226}\text{Ra}(\gamma, n)^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{225}\text{Ac}$	10 дней	Радиоиммунотерапевтический эмиттер для ряда онкологий
^{89}Y	$^{89}\text{Y}(\gamma, n)^{88}\text{Y}$	106 дней	Маркерный изотоп для промышленности
^{48}Ti	$^{48}\text{Ti}(\gamma, p)^{47}\text{Sc}$	3.4 дня	Терапевтическое применение/визуализация

Характерные планируемые мощности наработки изотопов ^{99}Mo на сверхпроводящем линейном электронном ускорителе - планируемое еженедельное производство порядка 9000 Ки (на ускорителе с энергией 40 МэВ и мощностью пучка около 100 кВт).

§4. Ускорительный метод получения медицинских изотопов: протоны

В качестве основной альтернативы реакторному производству медицинских радиоизотопов рассматривается производство радиоизотопов с помощью протонных и других пучков [15]. В частности это касается ^{99}Mo , который является прекурсором изотопа ^{99}Tc , применяемого в 80% ядерно-медицинских процедур. И именно этот тип радиоизотопа производится только на ограниченном количестве реакторов. Проблемой является также отмеченная выше тенденция остановки некоторых реакторов. Так NRU реактор в Chalk River (Canada), производящий 40 % мирового производства

^{99}Mo будет закрыт в 2016 г. после 60 лет работы и после многочисленных остановок из-за аварий и утечек радиоактивных материалов.

В последнее время преимущество в производстве изотопов отдается специализированным медицинским сильноточным циклотронам [4], что объясняется возможностью получения на них радиоизотопов с оптимальными ядерно-физическими свойствами. На них ускоряют протоны, дейтроны, гелионы-3 и гелионы-4 до энергий 10-50 МэВ. Выбор энергии определяется компромиссом между увеличением выхода целевого радиоизотопа и увеличением стоимости производства с возрастанием энергии частиц. Условно в этой области использования циклотронов различают 5 уровней в зависимости от максимальной энергии ускоряемых протонов. Возможности циклотронов I-IV уровней для производства радионуклидов показаны в Табл. 2. Ускорители 5-го уровня – сильноточные ускорители с > 200 МэВ, используются для производства отдельных радионуклидов. Как правило, производство этих радионуклидов на циклотронах меньшей энергии невозможно или неэффективно.

Табл. 2 Производство радионуклидов на протонных циклотронах I-IV уровней

Циклотрон	Энергия протонов, МэВ	Ядерные реакции	Основные производимые радионуклиды
Уровень I	≤ 10	(p,n), (p, α)	^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F
Уровень II	≤ 20	(p,n), (p, α)	^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F , ^{67}Ga , ^{103}Pd , ^{109}Cd , ^{111}In , ^{123}I , ^{124}I , ^{186}Re
Уровень III	≤ 45	(p,pn), (p,2n), (p,3n) и др.	^{22}Na , ^{38}K , ^{57}Co , ^{67}Ga , ^{68}Ge , ^{73}Se , ^{75}Br , ^{81}Rb (^{81}Kr), ^{111}In , ^{123}I , ^{201}Tl , ^{225}Ac

Уровень IV	≤ 200	(p,4n), (p,5n) и др.	^{22}Na , ^{28}Mg , ^{52}Fe , ^{67}Cu , ^{72}Se (^{72}As), ^{81}Rb (^{81}Kr), ^{82}Sr (^{82}Rb), ^{103}Pd , ^{109}Cd , $^{117\text{m}}\text{Sn}$, ^{123}I , ^{149}Tb , ^{201}Tl
------------	------------	----------------------	---

Табл. 3 дает представление о коммерческих циклотронах, используемых для производства медицинских радиоизотопов [16].

Табл. 3 Коммерческие циклотроны используемые для производства медицинских изотопов.

Циклотрон	Фирма	Страна	Энергия H ⁺ , МэВ	Ток пучка H ⁺ , мкА
Eclipse RD	SIEMENS	США	11	2x40
Eclipse HP	SIEMENS	США	11	2x60
Cyclone 11	IBA	Бельгия	10	2x60
Cyclone 18	IBA	Бельгия	18	100/150
PET-Trace	GE	США Швеция	16.5	100
NM-12	SUMITOMO	Япония	12	>60
TR 14	ACSI	Канада	18/24	>100
SS18	RIEE	Россия	18	100
TS-10	JINR	Россия	10	50

Процесс производства радиоизотопов состоит из двух основных операций [4]: облучения мишени и приготовления из нее конечного радиоактивного препарата. Мишень может помещаться внутрь вакуумной камеры ускорителя или находиться вне нее. В первом случае можно облучать мишень при весьма высоких токах - сотни и тысячи микроампер. Недостатком внутренней мишени является ограниченность материалов, которые могли бы выдержать очень высокое удельное тепловыделение (до нескольких кВт/см² и больше). При этом возникают дополнительные

проблемы, связанные с поддержанием вакуума. Однако для обеспечения высокой производительности на некоторых циклотронах используют только внутренние мишени. Например, на циклотроне Радиохимического центра в Эмершеме (Англия) мишень представляет собой тонкое покрытие, наносимое на медный диск-основу. Диск при этом вращается. Охлаждение основы осуществляется циркулирующей через нее водой. Мишень работает при токах до 750 мкА. Высокая наведенная активность мишени заставляет пользоваться автоматическими устройствами для ввода и, главное, вывода мишени из камеры циклотрона с последующей транспортировкой мишени в горячую камеру для радиохимической обработки. Для внешней мишени облучение производится отклоненным пучком, прошедшим через фольгу, при значительно меньших токах (не выше 100 мкА). Однако в этом случае круг веществ, служащих мишенью, значительно расширяется (мишенью могут служить металлы, соли, порошкообразные вещества и газы).

Для производства радиоизотопов для медицины используются большие протонные ускорители в сопутствующем (не основном) режиме ускорителя. Так в Центре нейтронной науки в Лос-Аламосе (Los Alamos Neutron Science Center, LANSCE) ускоритель протонов на энергию 800 МэВ установки Los Alamos Meson Physics Facility (LAMPF) используется для наработки некоторых изотопов [17], которые не производятся нигде в мире (^{26}Al , ^{32}Si). Для изотопов же ^{68}Ge и ^{82}Sc этот ускоритель является основным производителем.

Приведем также пример протонного ускорителя Proton-Synchrotron Booster с установкой ISOLDE, CERN [18], который будет служить базовой установкой комплекса CERN MEDICIS для производства и изучения радиоизотопов для медицины. Отметим, что данный ускоритель на протяжении 40 лет использовался для проведения многочисленных экспериментов по физике высоких энергий и фундаментальных

исследований ядерной структуры. В данном ускорителе протоны с выхода линейного ускорителя Linac2 ускорялись до энергии 1.4 ГэВ и инжектировались в протонный синхротрон (Proton Synchrotron). Установку CERN MEDICIS планируется полностью запустить в 2016 г., однако, уже в 2012 г. было произведено небольшое количество изотопа ^{152}Tb для клинических исследований в госпитале университета Лозанны. Произведенный источник (эмиттер) альфа-частиц на базе радиоизотопа ^{149}Tb уже зарекомендовал себя как "убийца" одиночных раковых клеток. Целью установки является производство малых порций радиоизотопов без носителя с суммарной активностью около 500 МБк для фундаментальных и доклинических исследований по медицине. Планируется активное сотрудничество с Университетским госпиталем Женевы (Geneva University Hospital HUG), Университетским госпиталем Лозанны (Lausanne University Hospital CHUV) и Швейцарским институтом экспериментальных исследований рака (Swiss Institute for Experimental Cancer Research ISREC).

В России для производства изотопов используется линейный протонный ускоритель INR (Троицк) с энергией протонов 160-600 МэВ и сильноточный циклотрон Ц-80 Курчатовского института.

§5. Ускорительные методы получения изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$

Как отмечалось выше $^{99\text{m}}\text{Tc}$ является наиболее востребованным в ядерной медицине изотопом. Ежегодно с применением данного изотопа в мире проводится более 30 миллионов сканирований [19]. По данным Республиканского центра радиологии и ожогов потребность Республики Армения в $^{99\text{m}}\text{Tc}$ составляет более 5000 доз в год.

Исходя из этого было принято решение о разработке технологии производстве в Армении именно этого изотопа – используя пучок протонов от циклотрона С18. Данный циклотрон в составе Центра по производству изотопов Министерства здравоохранения РА предназначен для производства ПЭТ изотопа ^{18}F . Разрабатываемая в ННЛА (ЕрФИ) технология позволит освоить получение $^{99\text{m}}\text{Tc}$ параллельно с ^{18}F .

С учетом этого остановимся подробнее на известных методах получения изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

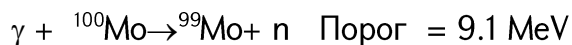
$^{99\text{m}}\text{Tc}$ может производиться разными методами и в основном является дочерним продуктом β -распада нуклида ^{99}Mo , который имеет период полураспада 65,94 часа [20]. Изотоп $^{99\text{m}}\text{Tc}$ обладает следующими свойствами: виды распада – изометрический переход с излучением гамма кванта 87.87%, внутренняя конверсия 12.13%, время полураспада – 6.0058 часов, энергия излученного гамма кванта – 0.1405 МэВ 98.6%, 0.1426 МэВ 1.4%.

Основным методом получения $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на сегодня является реакторный метод, при котором получается материнский нуклид ^{99}Mo в реакции деления ^{235}U под действием тепловых и быстрых нейтронов $^{235}\text{U}(n,f) \rightarrow ^{99}\text{Mo}$ [21,22].

Однако производство изотопа ^{99}Mo , который является продуктом деления урана, сопровождается значительными экологическими проблемами. Поэтому в последнее время в мировой практике, активно рассматриваются альтернативные пути производства ^{99}Mo и, соответственно, $^{99\text{m}}\text{Tc}$. В частности, в литературе описаны способы получения ^{99}Mo при облучении молибдена протонами с $E_p = 30$ МэВ [23,24,25] и $E_p = 70$ МэВ [26,27]. Получение ^{99}Mo возможно также на ускорителях электронов в результате фотоядерной реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma,n)^{99}\text{Mo}$ [28,29,30,31] с удельным выходом порядка сотен и тысяч единиц Бк/мкА•мг•час.

Получение ^{99m}Tc на электронных ускорителях.

Одним из возможных путей получения ^{99m}Tc является фотоядерная реакция для получения материнского изотопа ^{99}Mo [32,33], при которой ^{100}Mo облучается интенсивным фотонным пучком по следующей схеме:



↓

$T_{1/2} \sim 67 \text{ часов} \rightarrow {}^{99m}\text{Tc} (T_{1/2} \sim 6 \text{ часов})$

Порог данной реакции - 9.1 МэВ. Схема распада ^{99}Mo изображена на Рис. 3.

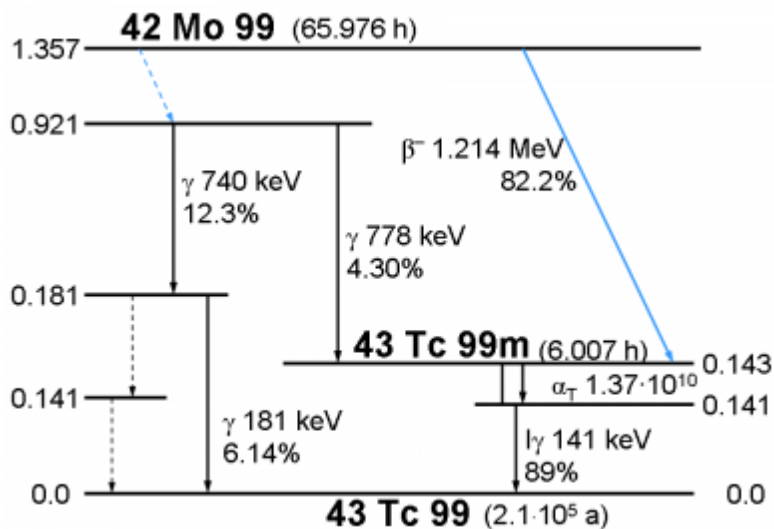


Рис. 3 Схема распада ^{99}Mo .

Данный метод не позволяет получить высокие удельные активности, однако при достаточно высокой интенсивности пучка позволяет покрыть местные и региональные потребности.

В 2012 году в ННЛА были проведены экспериментальные работы для изучения возможности производства изотопа ^{99m}Tc методом облучения ^{100}Mo на линейном инжекторе LUE50 ускорителя АРУС в Ереване [34]. Экспериментальная установка для получения ^{99}Mo изображена на Рис. 4.

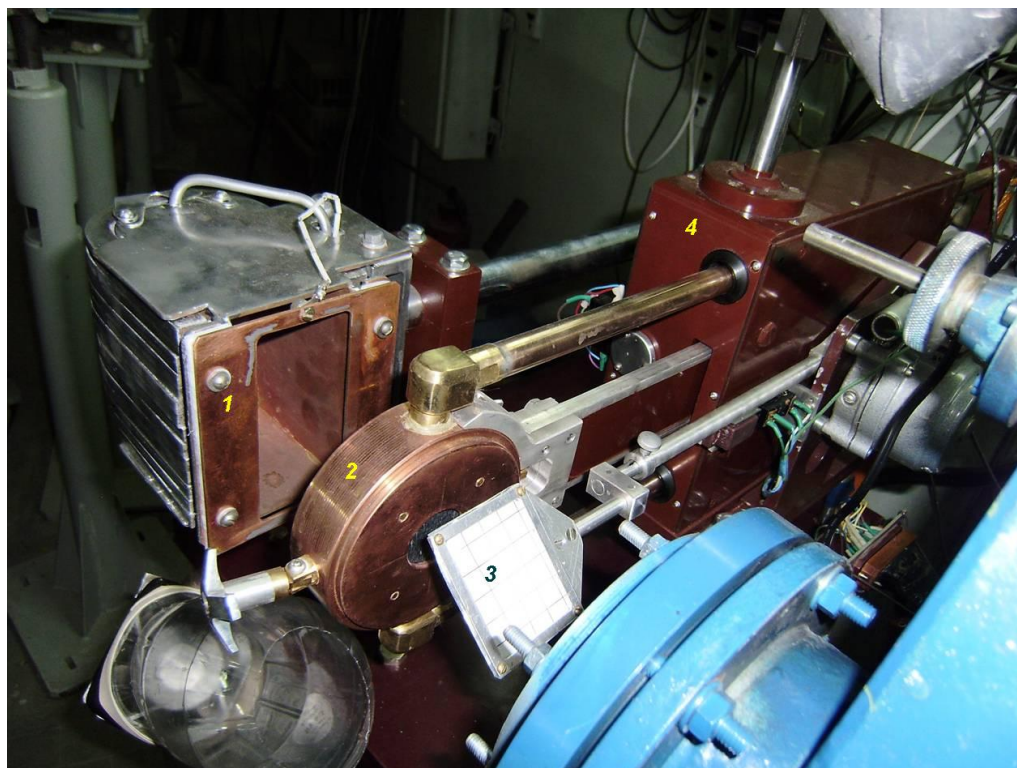


Рис. 4 Экспериментальная установка для получения ^{99}Mo на линейном инжекторе LUE50 ускорителя АРУС: 1 – цилиндр Фарадея для измерения интенсивности пучка, 2 – мишенный модуль, 3 – люминифорный экран для ТВ контроля профиля пучка, 4 – устройство дистанционного перемещения мишенного модуля.

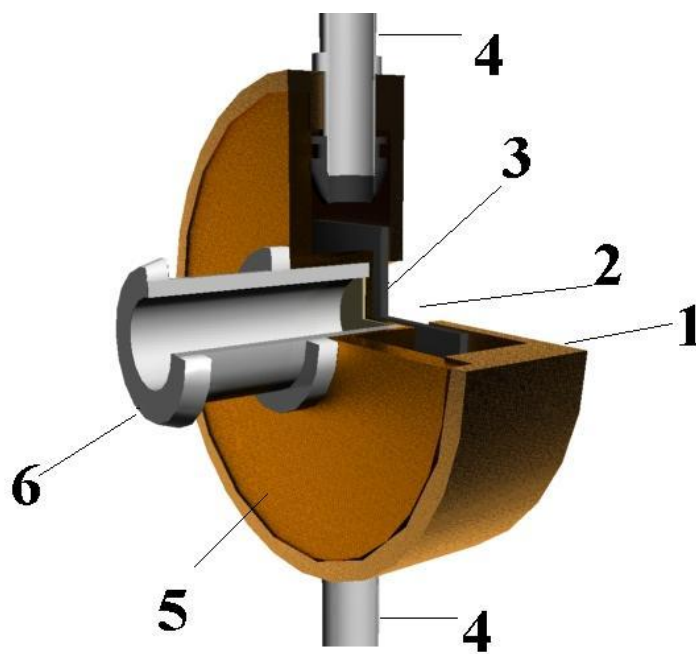


Рис. 5 Мишенный модуль: 1 – медный корпус, 2 – входное окно пучка, 3 – танталовая пластина, 4 – трубки водяного охлаждения, 5 – медная крышка, 6 – мишенная капсула.

Все каналы реакции, которые имеют место при облучении природного молибдена фотонным пучком приведены в Табл. 4.

Табл. 4 Каналы реакций облучения природного молибдена фотонным пучком.

Ядерные реакции	Распространенность изотопов Мо, %	Период полураспада	Порог реакции, МэВ	Пиковая энергия, МэВ	Поперечное сечение, мб	Излучаемая энергия, кэВ
$^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$	9,63	66 час	9,1	17,1	150	140
$^{100}\text{Mo}(\gamma, p)^{99}\text{Nb}$ $^{99\text{m}}\text{Nb}$	9,63	15 мин 2,6 мин	15 16,9	20,4 22	67 16	100
$^{98}\text{Mo}(\gamma, p)^{97}\text{Nb}$ $^{97\text{m}}\text{Nb}$	24,13	72 мин 1 мин	15,2 9,8	19,8	19 11	780
$^{97}\text{Mo}(\gamma, p)^{97}\text{Nb}$	9,55	23,35 час	12	21,9	21	780

$^{96}\text{Mo}(\gamma, p)^{95}\text{Nb}$	16,68	35 дня	12	21,8	21	764
$^{95}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{93\text{m}}\text{Mo}$	15,92	6,95 час	17	19,6	40	264
$^{94}\text{Mo}(\gamma, n)^{93\text{m}}\text{Mo}$	9,25	6,95 час	9,7	17,5	175	264
$^{92}\text{Mo}(\gamma, n)^{91}\text{Mo}$	14,84	15,5 мин	12,9	16	195	4434
$^{92}\text{Mo}(\gamma, n)^{91\text{m}}\text{Nb}$	14,84	64 дня	10,2	21	40	150

В описываемом эксперименте масса облучаемой мишени составляла 20 грамм, материал – триоксид молибдена MoO_3 , интенсивность электронного пучка 10 мкА, длительность облучения 100 часов.

Одним из главных параметров таких исследований является так называемая удельная активность – активность полученного изотопа, приведенная на единицу массы облучаемой мишени, на единицу тока пучка и на время облучения – Бк/мг·мкА·час. Опубликованные результаты данного параметра имеют очень большой разброс – от 90 до 3200 Бк/мг·мкА·час. В данном эксперименте получен результат 3000 Бк/мг·мкА·час, что близко к максимальному значению мировых данных.

Приведенные результаты показывают возможность получения промышленных количеств изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на электронных ускорителях при достаточно высоких интенсивностях пучка – более 50 мкА.

Получение $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на циклотронах.

Изотоп $^{99\text{m}}\text{Tc}$ также может быть непосредственно произведен на циклотроне методом бомбардировки ^{100}Mo протонным пучком в реакции $^{100}\text{Mo}(p, 2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$ [35,36]. Одним из главных преимуществ прямого получения $^{99\text{m}}\text{Tc}$ при использовании циклотронов, являются безвредность для

окружающей среды и более простая утилизации отходов по сравнению с реакторным методом получения. С другой стороны из-за сравнительно небольшого периода полураспада 6.02 часа, прямое производство может быть использовано только для местного применения [15]. Сечение реакции $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$ изображено на Рис. 6.

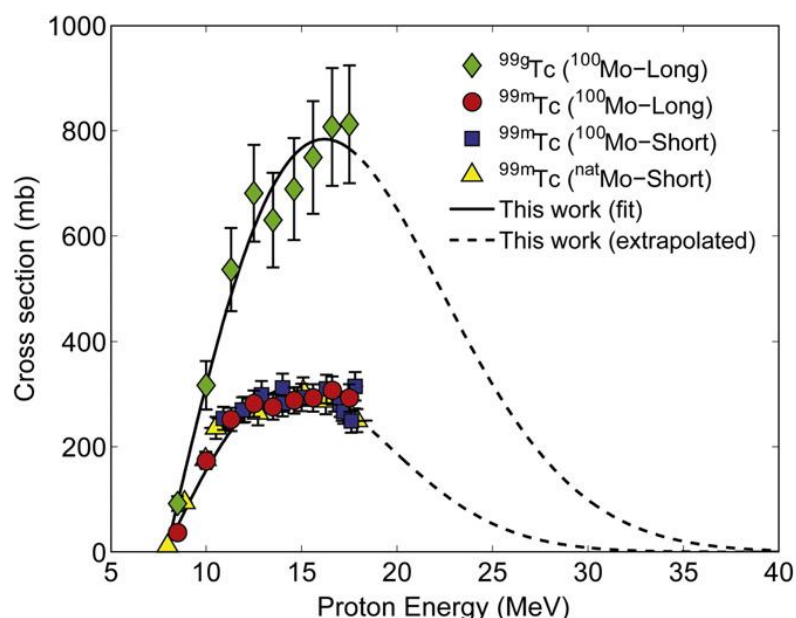


Рис. 6 Сечение реакции $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Натуральный молибден состоит из нескольких изотопов включая ^{92}Mo , ^{94}Mo , ^{95}Mo , ^{96}Mo , ^{97}Mo , ^{98}Mo и ^{100}Mo . При облучении натурального молибдена, в зависимости от энергии протона возможны также другие реакции, при которых получают разные изотопы Tc, в основном, $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{96}Tc , ^{95}Tc и ^{94}Tc .

При данном методе производства актуальными задачами являются технология изготовления мишени с высокими механическими и тепловыми характеристиками, технология самого облучения – в частности методика контроля поперечного профиля протонного пучка на плоскости мишени, технология выделения конечного изотопа из облученного материала,

технология контроля качества конечного продукта, технология восстановления облучаемого материала для многократного использования (облучения). Именно этим вопросам и посвящены следующие параграфы диссертации.

ГЛАВА 2. ТЕХНОЛОГИЯ ИЗГОТОВЛЕНИЯ И ОБЛУЧЕНИЯ МИШЕНЕЙ ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ^{99m}Tc НА ЦИКЛОТРОНЕ C18

Циклотрон C18, установленный в Центре Производства Изотопов, в Армении, предназначен в основном для получения ПЭТ изотопа ^{18}F . Общий вид циклотрона C18 показан на Рис. 7.

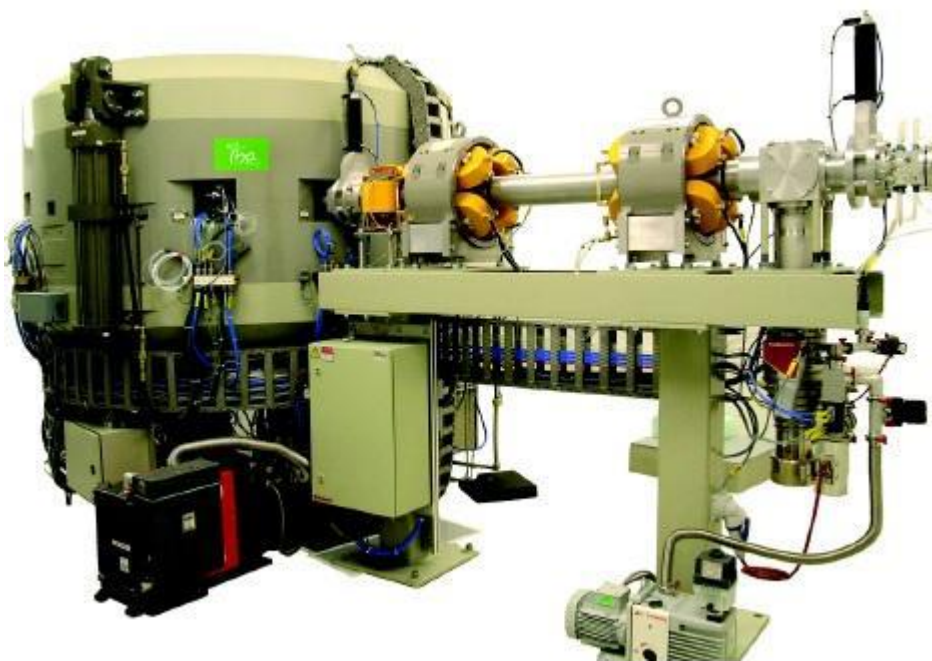


Рис. 7. Общий вид циклотрона C18 с выведенным почкопроводом.

Этот тип циклотрона предназначен для облучения как жидких, так и твердотельных мишеней. Для получения ^{18}F в качестве мишени используется вода, в которой кислород обогащен ^{18}O . Соответственно вся технология внедрения мишенного материала под пучок и его эвакуации после облучения рассчитаны на жидкую фазу материала мишени.

В спецификации циклотрона имеется также возможность облучения твердотельных мишеней. Для этого используется мишенный модуль "Nitra Solid Compact TS06" [37], который представляет собой сложную систему, обеспечивающую внедрение мишени под пучок, теплосъем и механическое крепление мишени, а также эвакуацию мишени после процесса облучения.

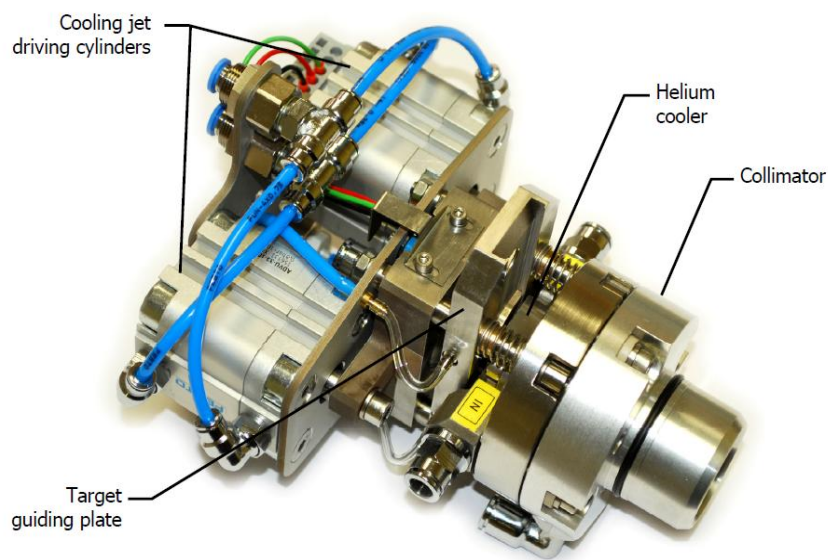


Рис. 8 Мишенный модуль Nitra Solid Compact TS06.

Мишень состоит из металлического диска и вещества облучения, которое располагается в центральном углублении диска (см. Рис. 9).

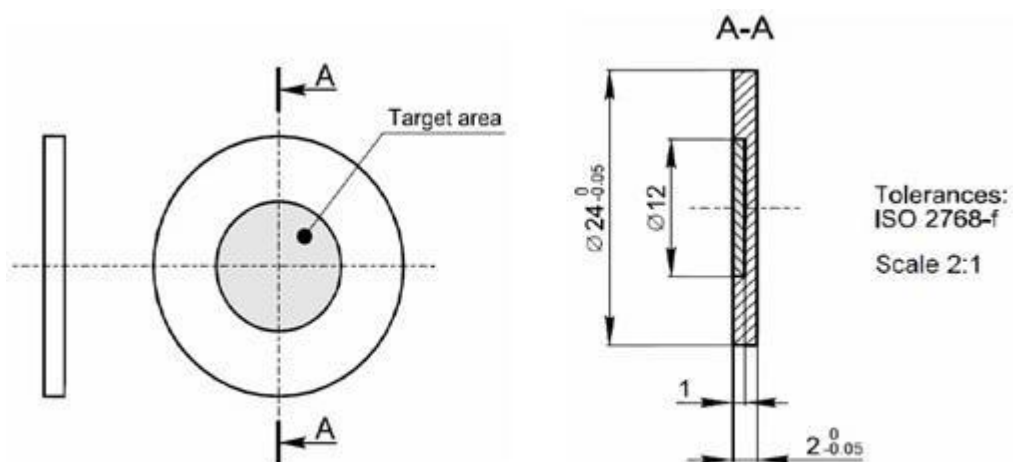


Рис. 9. Мишенный диск.

Для получения ^{99m}Tc в качестве мишенного материала используется молибден. Вследствие очень высокой температуры плавления ($T_{\text{пл}} = 2890 \text{ }^{\circ}\text{K}$) изготавливать из него заготовки для мишеней достаточно трудно. Поэтому в основном используется порошкообразный материал. Но порошок в свою очередь обладает очень низкой теплопроводностью и механической прочностью. Поэтому многие группы, занимающиеся в мире этой проблемой, ищут технологические пути изготовления твердотельных мишеней. В основном используются методы порошковой металлургии (см. в §1 Главы 2). Для увеличения эффективности теплоотвода часто устанавливают мишень под большим углом относительно оси пучка, что при том же поперечном геометрическом сечении мишени значительно увеличивает площадь съема тепла.

В данной главе проведены следующие исследования:

1. 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;

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

3. Проведен расчет методом конечных элементов тепловой нагрузки на мишени при различных профилях пучка на поверхности мишени, выбраны оптимальные параметры профиля пучка;

§1. Разработка методики изготовления молибденовых мишеней с лазерной обработкой поверхности

Стандартный мишенный диск имеет следующие геометрические размеры: диаметр – 24 мм, толщина – 2 мм, диаметр углубления – 12мм, глубина углубления –1 мм. Диск должен обладать высокой механической прочностью и высокой теплопроводностью для эффективного теплоотвода во время излучения и химической инертностью. Такими характеристиками обладают, например, титан и ниобий.

При получении ^{99m}Tc может использоваться порошок из ^{100}Mo или из натурального $^{\text{nat}}\text{Mo}$. Для облучения необходимо изготовить твердый диск из порошка и поместить его в мишенную зону. Обычно для производства твердотельной мишени из порошка используется метод порошковой металлургии. В данном методе порошок сначала запрессовывается в виде таблетки а потом спекается при высокой температуре. Края порошковых гранул плавятся и соединяются, образуя твердотельную структуру [38] (см. Рис. 10).

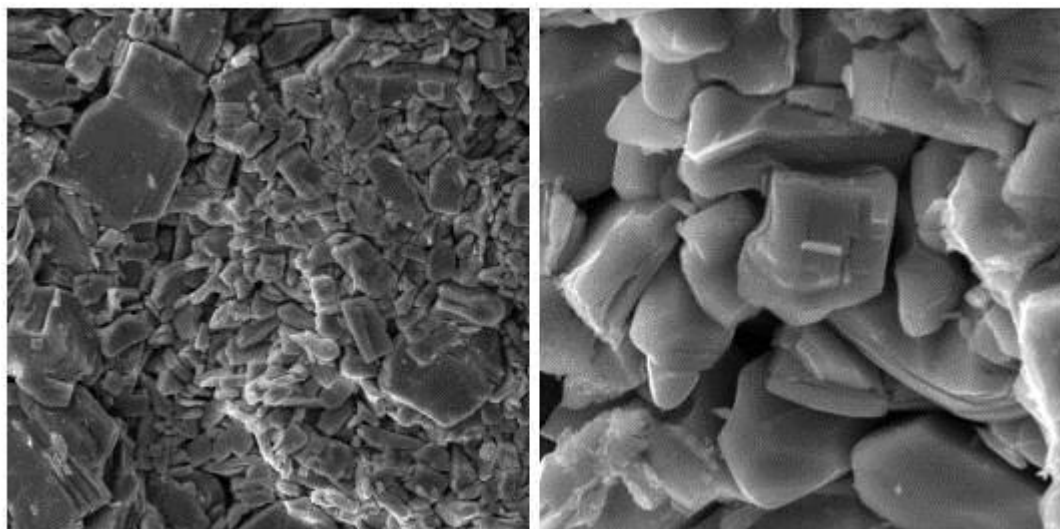


Рис. 10. Изображения гранул порошка молибдена снятых электронным микроскопом при разных увеличениях после термической обработки.

Нами был применен стандартный метод прессовки натурального молибденового порошка прессом с силой ~ 40000 N, разработаны и изготовлены соответствующие матрицы и пуасоны (см. Рис. 11).



Рис. 11. Пресс с матрицей и пуансоном для прессования молибдена в форме диска.

Таблетка, полученная после прессовки, изображена на Рис. 12.

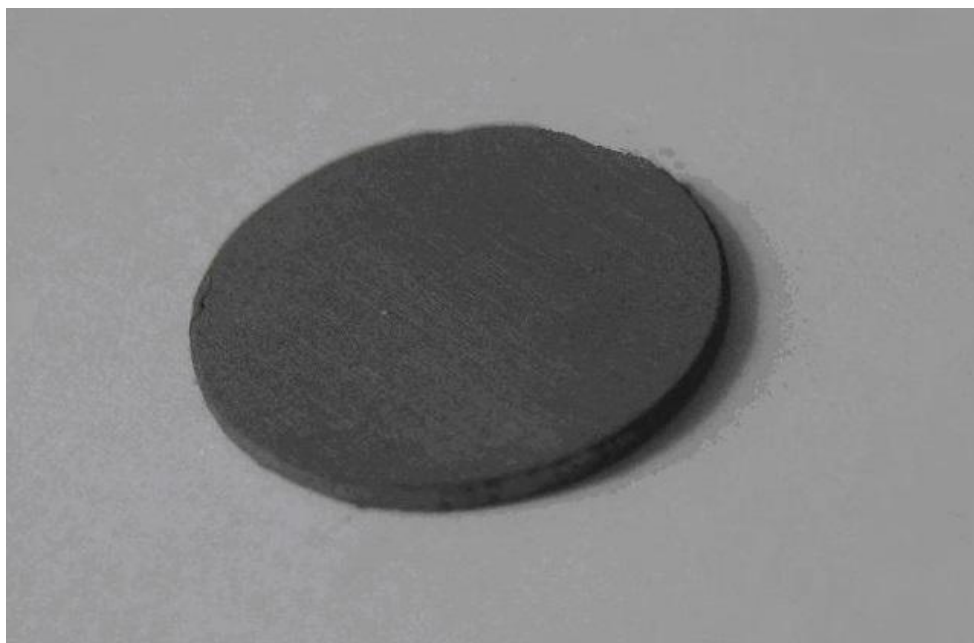


Рис. 12. Таблетка натурального молибдена, полученная после прессовки.

Тем не менее, без дополнительной обработки такая таблетка не обладает достаточной прочностью и может разрушиться во время установки в мишенную зону или при извлечения после облучения.

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. 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.

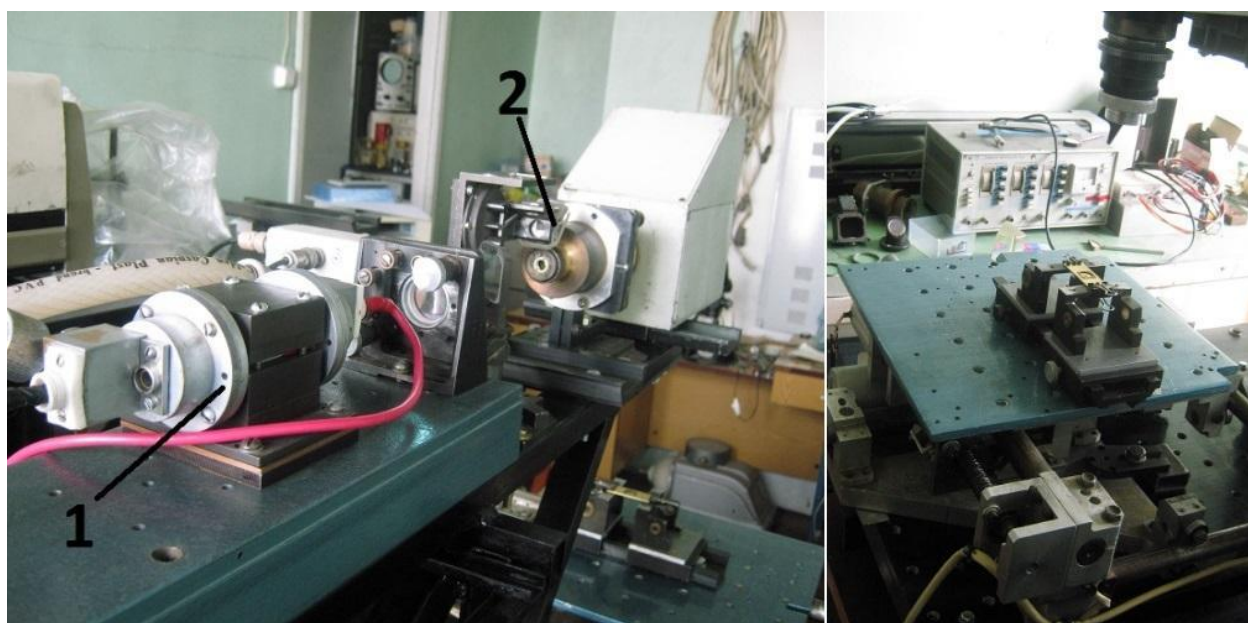


Рис. 13. Устройство автоматической обработки молибденовых мишеней лазером: слева - твердотельный лазер: 1 - лазер, 2 - расширитель пучка; справа - 2-х координатный стол с удаленным компьютерным управлением.

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. 14.

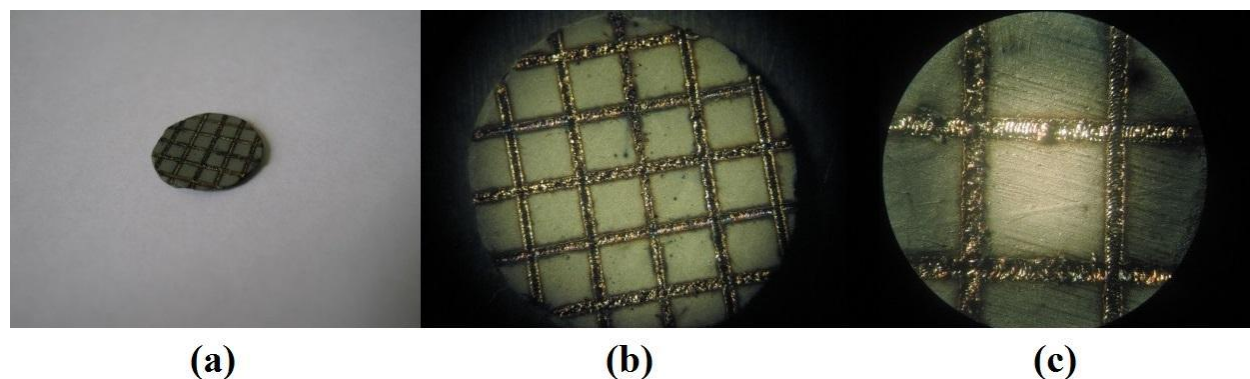


Рис. 14 Молибденовая таблетка, обработанная лазерным пучком при разных увеличениях: (a) общий вид, (b) увеличение в 20 раз, (c) увеличение в 42 раза.

После такой обработки механическая прочность таблетки априори должна вырасти. Причиной такого упрочнения является тот фактор, что проплавленные борозды металлического молибдена на поверхности таблетки играют роль, аналогичную стальной арматуре в железобетоне. Для объективной оценки этого предположения было создано устройство для измерения относительной прочности таблеток с лазерной обработкой и без лазерной обработки.

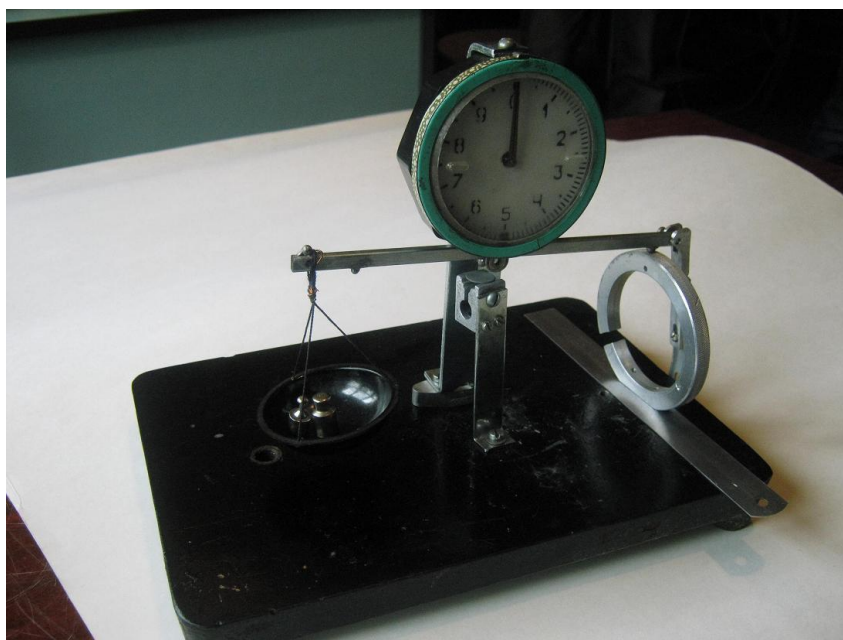


Рис. 15. Измеритель механической прочности таблеток.

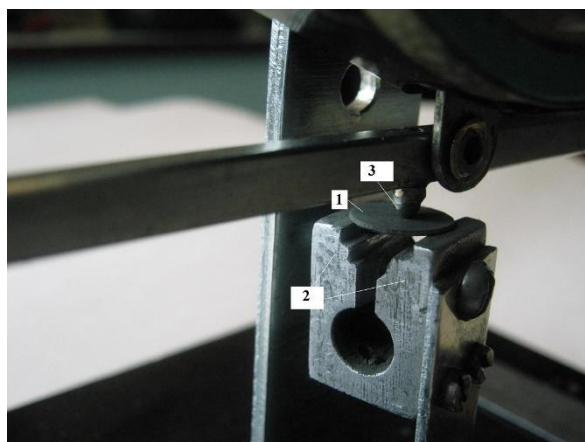
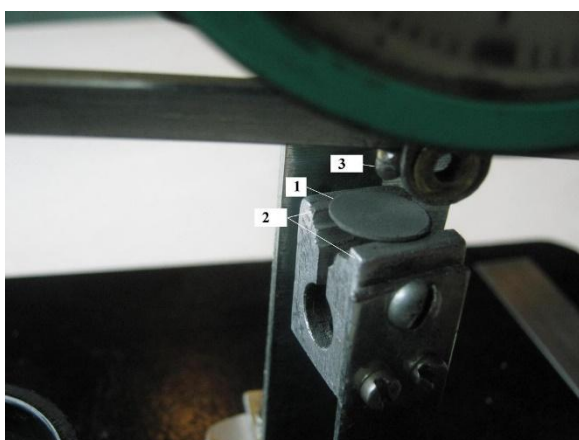


Рис. 16. 1- таблетка молибдена установлена на подставку 2. 3 – стальной шарик давит на поверхность таблетки с силой, определяемой весом гирь в чашке на Рис. 9. Слева – до измерения прочности, справа – шарик давит на поверхность таблетки.

На Рис. 15 и Рис. 16 приведены фотографии устройства для измерения относительной прочности таблеток. Давление стального шарика 3 на

таблетку 1 определяется весом гирек в чашечке весов на Рис. 9. При достижении определенного усилия таблетка разрушается.

Было изготовлено 10 таблеток с примерно одинаковыми характеристиками. Для пяти из них было проведено измерение прочности без лазерной обработки, а для следующих пяти – после лазерной обработки. Результаты измерений приведены в Табл. 5 и Табл. 6.

Табл. 5 Относительная механическая прочность таблеток без лазерной обработки.

№	Диаметр (мм)	Толщина (мм)	Вес (мг)	Механическая прочность (о.е.)
1	9	0.8	580	445
2	9	0.76	560	476
3	9	0.7	570	560
4	9	0.72	540	426
5	9	0.74	535	436

Табл. 6 Относительная механическая прочность таблеток после лазерной обработки.

№	Диаметр (мм)	Толщина (мм)	Вес (мг)	Механическая прочность (о.е.)
1	9	0.75	560	884
2	9	0.78	570	844
3	9	0.79	570	724
4	9	0.80	580	604
5	9	0.76	535	644

Как видно из приведенных таблиц – механическая прочность после лазерной обработки выросла более чем в 1.5 раз.

На следующем этапе разработки технологии изготовления мишеней были изготовлены диски-подложки из титана и в его мишенном углублении был запрессован мелкодисперсный порошок природного молибдена (см. Рис. 17).



Рис. 17. Мишенный диск с запрессованным природным молибденом (в центральном круге).

Далее, для увеличения механической прочности поверхность была подвергнута лазерной обработке по вышеприведенной технологии (см. Рис. 18).



Рис. 18 Мишенный диск с запрессованным молибденом после лазерной обработки (слева), с 40-кратным увеличением (справа).

Тем не менее, потребовалось дополнительное укрепление механического контакта молибдена с основой. Для этого проведена дополнительная лазерная обработка поверхности, при которой в 4 секторах внешнего круга молибдена произведена сварка молибденовой мишени с мишенным диском (см. Рис. 19). Это исключает отрыв запрессованной мишени от мишенного диска и повышает теплопроводность мишени.



Рис. 19. Мишенный диск с молибденом после дополнительного усиления контакта с мишенным диском в 4 точках (слева), с 30-кратным увеличением (справа).

Таким образом, разработанная нами методика лазерной обработки поверхности таблетки из прессованного молибденового порошка может быть использована для изготовления реальных твердотельных мишеней для облучения под протонным пучком циклотрона.

Известно, что Мо окисляется в воздухе при температурах $T > 600^{\circ}\text{C}$. Во время лазерной обработки температура поверхности места плавления достигает выше 2700°C . Данный факт вызывал беспокойство в связи с тем, что часть металлического молибдена может трансформироваться в MoO_3 во время обработки. Чтобы проверить данное предположение, лазерная обработка была проведена в специальной герметичной установке, наполненной инертным газом. Для проверки отсутствия окисления молибдена при лазерной обработке были изготовлены три идентичные таблетки из молибдена. Первая таблетка была запрессована без лазерной обработки. Вторая таблетка была обработана лазером в воздухе, а третья в неоновой среде. В качестве контрольного материала был взят чистый MoO_3 . Все четыре образца были подвергнуты рентгеновскому фазовому анализу. Результаты анализа приведены на Рис. 20.

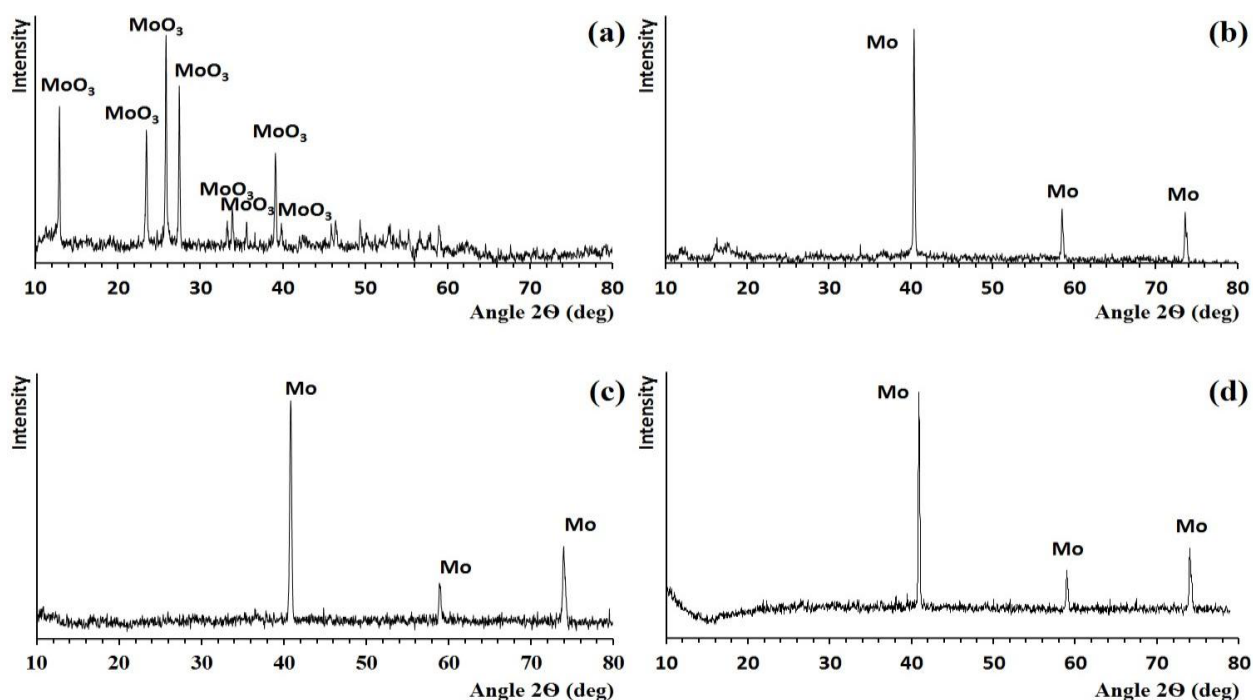


Рис. 20 Спектральный рентгеновский фазовый анализ: (а) порошка MoO_3 , (б) таблетки прессованного металлического Мо без обработки, (с) таблетки прессованного Мо обработанного лазером в воздухе, (д) таблетки прессованного Мо обработанного лазером в неоновой атмосфере.

Как видно из приведенных спектров, в процессе лазерной обработки не происходит преобразования Мо в MoO_3 . Все три спектра образцов без лазерной обработки и образцов, прошедших лазерную обработку в воздухе и в среде инертного газа – абсолютно идентичны и не похожи на спектр контрольного образца от MoO_3 . Очевидно, в процессе лазерной обработки температурное воздействие настолько короткое по времени, что медленные химические процессы окисления просто не успевают произойти.

§2. Теплофизический расчет облучения мишени

Теоретическое обоснование возможности криогенного охлаждения твердотельной мишени при облучении пучком протонов циклотрона С18 приведено в [39].

Во время облучения мишень по заводской технологии охлаждается с фронтальной и тыловой сторон. С фронтальной стороны мишень охлаждается потоком гелия. Тыловое охлаждение мишени по заводской технологии осуществляется потоком воды под давлением 8 бар. Этот метод позволяет утилизировать $W = 500$ Вт тепловой мощности, выделяемой в мишени от пучка. При энергии протонов $E_p = 18$ МэВ эта мощность соответствует току пучка $I_p \approx 27$ мкА, тогда как циклотрон С18 может обеспечить ток до 100 мкА. Таким образом, увеличение интенсивности процесса охлаждения мишени позволяет значительно увеличить ток пучка при облучении и повысить эффективность получения изотопа. Для увеличения теплоотвода с мишени предлагается производить охлаждение с тыльной стороны мишени жидким азотом. Актуален вопрос выбора материала мишени, так как эффективность теплоотвода существенно зависит от его тепловых характеристик. Фактически для выбора подходящего материала мишенного диска и метода охлаждения нужно произвести предварительный теплофизический расчет осесимметричной мишени в процессе получения изотопа ^{99m}Tc . Такой анализ теплофизических процессов проведен методом конечных элементов с помощью программы ANSYS. Приведена методика расчетов, обоснована зависимость тепловыделения и теплоотвода от геометрических параметров пучка на мишени, соответственно обоснована необходимость измерения профиля пучка на мишени.

Мишенный диск имеет следующие геометрические размеры: диаметр – 12 мм, высота – 2 мм, диаметр углубления – 6 мм, глубина углубления – 1 мм. Оптимальная толщина мишени определяется сечением реакции $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$ для протона с энергией 18 МэВ. Согласно предварительным расчетам на базе SRIM данная толщина составляет 408 мкм [37].

Материал, из которого изготовлен металлический диск должен обладать высокой механической прочностью, высокой теплопроводностью для эффективного теплоотвода во время облучения и должен быть химически инертным. В компромиссном варианте такими качествами обладают, например, титан и ниобий.

В основе теплофизического расчета мишени в процессе ее облучения протонным пучком лежит решение уравнения теплопроводности

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = q(t, x, y, z) + \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right), \quad (1)$$

где $T(t, x, y, z)$ – температура, зависящая от времени t и пространственных координат x, y, z , ρ – плотность материала, c – теплоемкость, q – функция генерации тепла в единичном объеме в единицу времени, λ – коэффициент теплопроводности (предполагается, что λ может зависеть от температуры). Функция q определяет образование тепла в результате рассеяния и поглощения протонного пучка в материале мишени, т.е. локальной плотностью потока и сечением поглощения протонов в данном типе вещества мишени.

Нас интересует стационарное решение данной теплофизической задачи, поэтому определяющий динамику температурного поля первый член в уравнении (1) опускаем. Кроме того мы ограничимся осесимметричным решением уравнения, т.к. пучок обычно имеет аксиальную симметрию.

Теплофизический расчет мишени производится с помощью метода конечных элементов (МКЭ). Суть МКЭ заключается в том, что область, в которой ищется решение дифференциальных уравнений, разбивается на конечное количество подобластей (элементов). В каждом из элементов произвольно выбирается вид аппроксимирующей функции. В простейшем случае это полином первой степени. Вне своего элемента аппроксимирующая функция равна нулю. Значения функций на границах элементов (в узлах) являются решением задачи и заранее неизвестны. Коэффициенты аппроксимирующих функций обычно ищутся из условия равенства значения соседних функций на границах между элементами (в узлах). Затем эти коэффициенты выражаются через значения функций в узлах элементов. Составляется система линейных алгебраических уравнений. Количество уравнений равно количеству неизвестных значений в узлах, на которых ищется решение исходной системы, прямо пропорционально количеству элементов и ограничивается только возможностями ЭВМ. Так как каждый из элементов связан с ограниченным количеством соседних, система линейных алгебраических уравнений имеет разреженный вид, что существенно упрощает её решение [40].

Данный метод на сегодняшний день является основным инструментом для произведения сложных теплофизических расчетов. Нами были произведены расчеты с помощью программы AnsysFlotran, ANSYS. Программа ANSYS — универсальная программная система конечно-элементного анализа, существующая и развивающаяся на протяжении последних 30 лет, является довольно популярной у специалистов в сфере автоматизированных инженерных расчетов и решения линейных и нелинейных, стационарных и нестационарных пространственных задач

механики деформируемого твердого тела, механики конструкций, жидкости и газа, теплопередачи и теплообмена, электродинамики, акустики.

Модель мишенного диска и мишени состоит из нескольких областей. Сечение осесимметричной модели показано на Рис. 21. Ось мишени проходит вдоль левых границ областей 1, 2, 4.

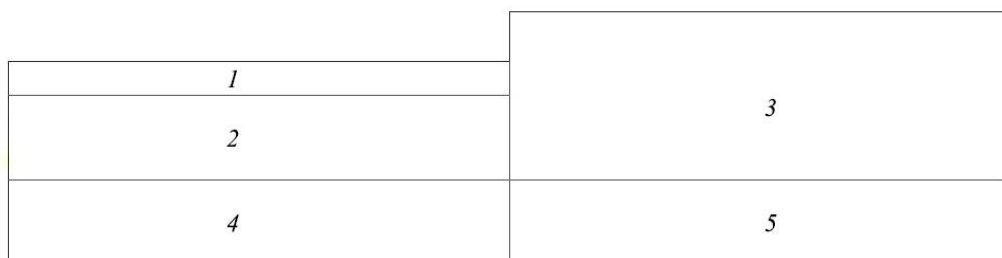


Рис. 21 Расчетные области мишени: 1 — мишенное вещество, 2, 3 — области мишенного диска, 4, 5 — области вещества прилегающего к мишенному диску (вода в случае водяного охлаждения и медь в случае азотного охлаждения).

После задания параметрической геометрии модели для каждой расчетной области была введена таблица теплопроводностей материалов данной области при разных температурах [41] (см. Табл. 7).

Табл. 7 Зависимость коэффициентов теплопроводностей составных материалов мишени и мишенного диска.

Температура, К	Теплопроводность, Вт/мм/К			
	Молибден	Ниобий	Титан	Медь
4	0.061	0.14	0.0058	16.2
10	0.15	0.29	0.014	24
20	0.29	0.25	0.028	10.8
40	0.36	0.095	0.039	2.17

80	0.21	0.058	0.033	0.56
150	0.149	0.053	0.027	0.429
200	0.143	0.053	0.025	0.413
300	0.138	0.054	0.022	0.401
400	0.134	0.055	0.02	0.393
600	0.126	0.058	0.019	0.379
800	0.118	0.061	0.02	0.366
1000	0.112	0.064	0.021	0.352

После задания теплопроводностей материалов задаются сетка конечных элементов модели, мощности, генерируемой в каждой области, условия конвекционных теплосъемов с поверхностей мишени и граничные условия в нижней части мишени. Сетка конечных элементов показана на Рис. 22.

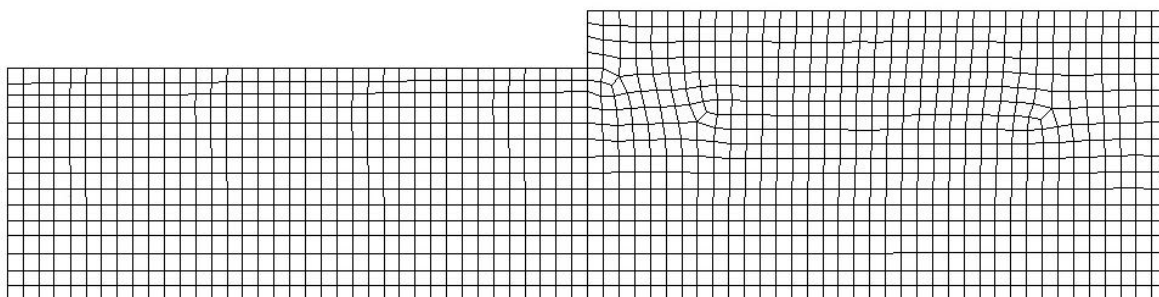


Рис. 22 Сетка конечных элементов модели мишенного диска.

Как уже отмечалось теплоотвод мишени с фронтальной стороны осуществляется обдувом гелия, а с задней стороны может осуществляться потоком жидкого азота или воды. По спецификации мишенного модуля, максимальное допустимое давление гелия на входе мишени - 0,5 МПа, а максимальная температура на входе 25°C. Коэффициент поверхностного теплоотвода при таких условия составляет порядка 550Вт/м²К [42] (в диапазоне скоростей потока гелия от 3-7 м/с). Заметим, что вычисления

показали, что изменения этого коэффициента незначительно меняют общую картину теплофизического расчета. Различные условия эксплуатации мишени моделируются соответствующим рядом граничных условий.

Расчет произведен 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) [43]. После решения програма рассчитывает распределение температуры в заданной модели. Примеры решения поставленной задачи для мишенного диска из титана в случае тылового охлаждения жидким азотом при различных распределений пучка приведены на Рис. 23.

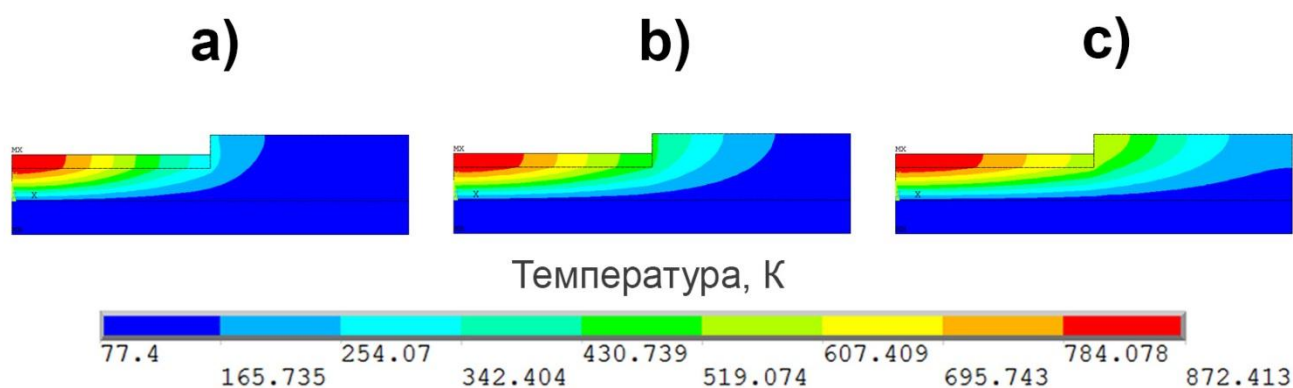


Рис. 23 Распределения температур в мишенном диске из титана в случае тылового охлаждения жидким азотом:

- a) при среднеквадратическом отклонении гауссовского распределения пучка σ – 3 мм и токе пучка – 16.4 μA ,
- b) при среднеквадратическом отклонении гауссовского распределения пучка σ – 4 мм и токе пучка – 25.2 μA
- c) при среднеквадратическом отклонении гауссовского распределения пучка σ – 5 мм и токе пучка – 36.2 μA .

Результаты расчетов распределения температуры на поверхности мишени для ниобиевой мишени и режима тылового охлаждения жидким азотом для различных распределений пучка приведены на Рис. 24.

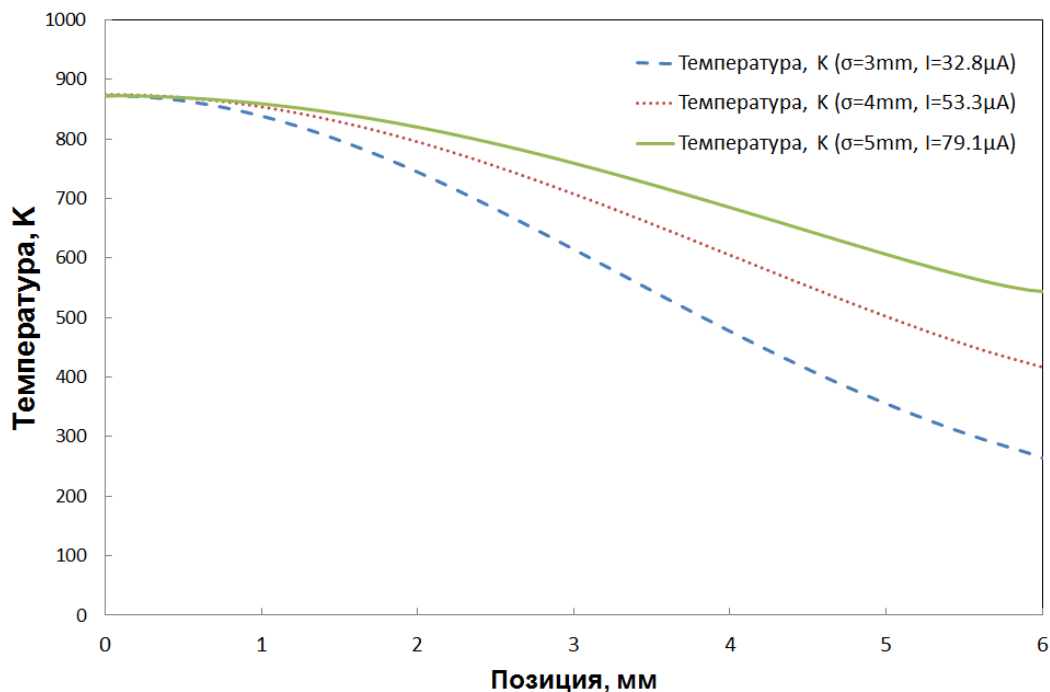


Рис. 24 Распределение температуры на поверхности мишени при различных распределениях пучка в случае ниобиевого мишенного диска и тылового режима охлаждения с помощью жидкого азота.

Результаты расчетов максимально допустимых и эффективных токов при которых температура поверхности не превышает 600 °С в зависимости от распределения пучка, материала мишенного диска и метода охлаждения приведены в Табл. 8.

Табл. 8. Результаты расчетов в зависимости от распределения пучка, материала мишенного диска и метода охлаждения.

Входные параметры			Полученные параметры			
Коэфф. распредел. пучка σ , mm	Материал миш. диска	Метод охлаждения	Макс. ток пучка, μA	Эффективность пучка, %	Эффективный ток, μA	Макс. температура мишени, 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

Основываясь на данных расчетах можно сделать следующие выводы:

1. Материал мишенного диска существенно влияет на теплоотвод во время облучения протонным пучком.
2. Если вместо стандартного охлаждения водой с тыловой части производить охлаждение жидким азотом, возможно существенно повысить интенсивность облучения и таким образом увеличить выход полученного изотопа.
3. Важным параметром при облучении мишени является распределение профиля пучка частиц. Согласование этого профиля с параметрами мишени имеет существенное значение при определении максимального допустимого тока пучка и эффективности процесса.

§3. Криогенное охлаждение мишенного модуля

Для увеличения теплоотвода с мишени предлагается производить охлаждение с тыльной стороны мишени жидким азотом. Идеология этого предложения заключается в следующем. Тепловой поток эквивалентен электрическому току в законе Ома. Поскольку нашей задачей фактически является увеличение теплового потока от мишени к охлаждающему элементу, то это можно осуществить двумя путями. Первый – уменьшить тепловое сопротивление – эквивалент электрического сопротивления в электротехнике, то есть увеличить теплопроводность материалов от мишени до охлаждающей поверхности. Поскольку увеличение теплопроводности ограничено порошковой структурой мишенного материала, то на этом пути возможности сильно ограничены. Остается увеличение разности температур между мишенью и охлаждающим элементом. Это является эквивалентом разности потенциалов в электротехническом варианте. И жидкий азот может быть соответствующей альтернативой охлаждающей воде.

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. 25 и Рис. 26). Температура поверхности мишени измерялась дистанционным инфракрасным термометром – пирометром.

В качестве охлаждающего элемента была разработана и изготовлена медная плата с каналами внутри для жидкого азота. Мишень из запрессованного молибдена укреплялась на поверхности медной платы, а по боковому штуцеру подавался жидкий азот.

Тест показал следующие результаты:

1. Без подачи жидкого азота при воздействии лазерного луча на мишень температура поверхности нарастала со временем и достигла равновесного значения 500 °С.
2. При подаче жидкого азота в охладитель при той же интенсивности лазерного воздействия температура нарастала со временем и достигла равновесного значения в 320 °С.
3. На лицевую часть мишени никакого охлаждающего воздействия не осуществлялось.



Рис. 25 Лазерная система имитации нагрева от пучка и система криогенного охлаждения. На правом рисунке красное пятно в центре мишени – инфракрасное излучение от мишени, нагретой лазерным пучком.

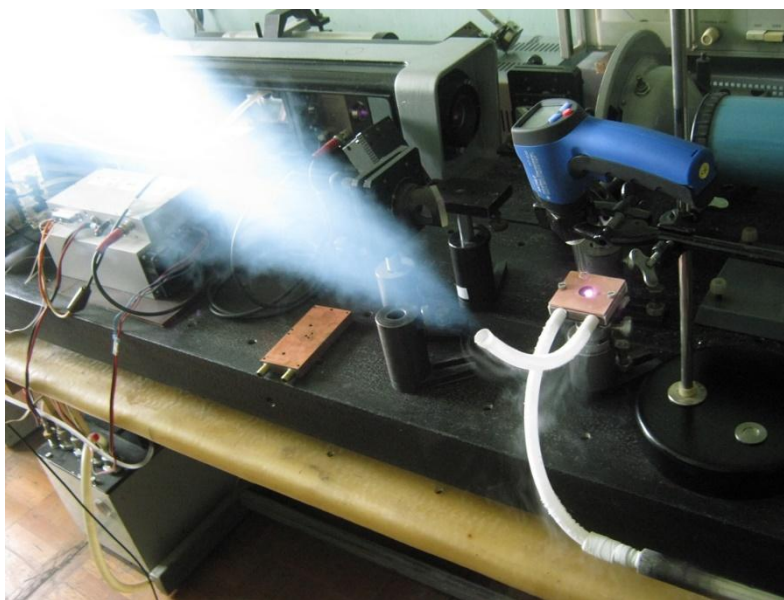


Рис. 26 Система лазерного нагрева мишени и криогенного охлаждения в действии.

Выводы проведенного эксперимента:

1. Проведенный качественный эксперимент показал принципиальную возможность криогенного охлаждения мишени при облучении пучком протонов от циклотрона С18.
2. Эффективное криогенное охлаждение снизило температуру лицевой поверхности мишени на 180°C (с 500°C до 320°C – то есть примерно в 1.5 раза)
3. Проведенная имитация нагрева мишени лазерным пучком не является абсолютно корректной, так как при облучении мишени протонным пучком нагрев мишени происходит по всей толщине мишени вдоль оси пучка, в то время как при лазерном облучении происходит нагрев только очень тонкого слоя на самой поверхности мишени. Так что при лазерном облучении поток тепла от места нагрева до плоскости охлаждения проходит намного более длинный путь. И отсюда можно

предположить, что при реальном облучении протонным пучком эффективность криогенного охлаждения будет даже выше, чем в тестовом эксперименте.

Предварительные оценки показывают, что расход жидкого азота составит 5-7 литров в час, что является невысокой ценой для повышения эффективности облучения и соответственно повышению производительности конечного продукта – изотопа ^{99m}Tc .

Эти исследования целесообразно продолжить под пучком CO_2 лазера с максимальной мощностью лазерного пучка 500 Вт.

ГЛАВА 3. ИЗМЕРЕНИЕ ПРОФИЛЯ ПУЧКА – НЕРАЗРУШАЮЩИЙ МЕТОД СКАНИРОВАНИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ, ПРОТОННЫХ И НЕЙТРОННЫХ ПУЧКОВ

Как было показано в предыдущей главе, согласование параметров пучка с параметрами мишени существенно влияет на эффективность процесса получения изотопа. Причем данное согласование актуально не только для прямого получения ^{99m}Tc на протонном пучке, но и в методах получения ^{99m}Tc с помощью нейтронных или электронных пучков.

Для измерения поперечных профилей пучков широко используются струнные датчики, в которых производится измерение потока вторичных частиц или фотонов, образующихся в процессе рассеяния пучка на материале струны. Такой метод измерения требует наличия движущейся мишени в виде струны и системы измерения вторичных частиц/фотонов. Кроме того в поле зрения системы измерения кроме потока вторичных частиц или фотонов, образующихся в процессе рассеяния пучка на струне попадает большое количество фоновых сигналов существенно искажающих результаты измерения и сильно уменьшающих точность измерений.

В ННЛА были разработаны датчики вибрирующей струны, обладающие беспрецедентной точностью и большим динамическим диапазоном [44,45,46,47,48,49,50,51,52,53]. 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. Была разработана модификация с отдельными струнами. Здесь одна струна являлась вибрирующей (измерительной), а другая служила мишенью для пучка. Изменение натяжения мишенной струны передавалось на вибрирующую с помощью специального коромысельного механизма [54]. 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. В 2014 г. была предложена новая модификация разработанного сканера [55], 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. В этом случае можно существенно ускорить процесс сканирования, что дает возможность, помимо измерения одномерных профилей пучков, использовать их также для восстановления сложных двумерных сечений пучка по набору профилей, соответствующих различным углам сканирования (характерная задача томографии). Тестовые эксперименты такой установки были проведены на фотонных пучках [56]. Были разработаны специальные датчики для измерения нейтронных пучков. Принцип действия таких датчиков заключается в том, что вибрирующая струна покрывается гадолиниевым покрытием [57]. 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.

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 ННЛА в экспериментальной установке для получения генераторного изотопа ^{99}Mo для $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на линейном инжекторе LUE50 электронного накопителя АРУС [34,33].

§1. Струнный сканер вибрирующей струны: основные типы и параметры

Принцип действия датчика на вибрирующей струне основан на изменении частоты вибрирующей струны с закрепленными концами при взаимодействии с пучком. Под воздействием падающего пучка происходит передача определенной части энергии пучка в струну, в результате чего меняется температура струны. Это приводит к изменению натяжения струны и, следовательно, к изменению частоты колебаний, которая измеряется с большой точностью специально разработанной электронной платой. Важным преимуществом датчиков на вибрирующей струне являются стабильность, высокая точность и широкий диапазон измерения.

В датчике струна механически закреплена на жесткой основе и находится в постоянном магнитном поле. Для возбуждения колебаний струны используется переменный ток в схеме положительной обратной связи. Так как струна находится в магнитном поле, при случайных осцилляциях струны на ней индуцируется ток. Ток подается на схему обратной связи, усиливается и снова подается на струну. Данный процесс приводит к усилению амплитуды спонтанных колебаний. Поскольку для закрепленной струны

существуют резонансные моды собственных колебаний, то из набора спонтанных колебаний разной частоты "выживают" только резонансные. Процесс усиления резонансных колебаний продолжается до тех пор, пока не доходит насыщения. В электронной схеме предусмотрена схема прецизионной стабилизации амплитуды колебаний струны. Общий вид датчика приведен на Рис. 27.

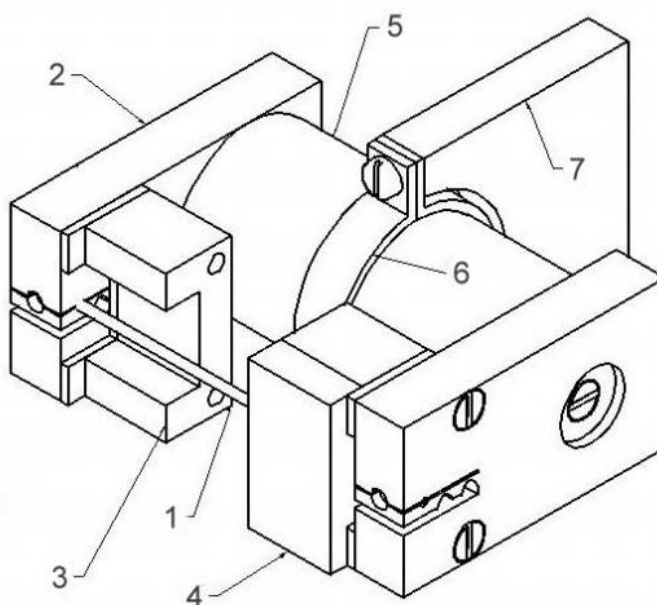


Рис. 27 Общий вид датчика вибрирующей струны. 1–струна, 2–крепления струны, 3,4–постоянные магниты, 5–базовая опора, 6,7–крепление опоры на сканирующий механизм.

Взаимодействие пучка со струной приводит к ее нагреванию из-за потери энергии падающих частиц пучка в веществе струны. При постоянном тепловом потоке, падающем на струну, струна приходит в тепловое равновесие с окружающей средой. Теплоотвод со струны осуществляется тремя путями: теплопроводностью вдоль струны к узлам крепления струны, тепловым излучением и теплоотводом посредством конвекции, если струна

помещена в некоторую атмосферу. Изменение средней температуры приводит к изменению натяжения струны, которое регистрируется измерением частоты колебаний струны. На приведенном на Рис. 27 датчике возбуждается вторая гармоника собственных колебаний,

Изменение длины ненатянутой струны на величину, обусловленное изменением температуры струны приводит к изменению натяжения струны и соответствующему сдвигу резонансной частоты.

При этом в зависимости относительного изменения частоты от температуры выделяется большой безразмерный коэффициент отношения модуля упругости к много меньшему натяжению струны. Именно это обстоятельство приводит к сильной зависимости частоты собственных колебаний струны от ее температуры. Например, для нержавеющей стали значение E порядка 200 ГПа, а натяжение не превышает предела текучести материала порядка 500-800 МПа. Если измерение частоты производится с точностью 0.01 Гц (типичное значение точности измерения частоты колебаний струны в ежесекундном режиме), то соответствующее данной частоте изменение температуры оказывается меньше чем 0.001 К.

Многострунные датчики.

В случае использования датчика с одной струной для измерения поперечного профиля пучка необходимо производить поперечное сканирование пучка. Это может быть осуществлено специальной системой механической подачи сканера, например, при помощи шагового двигателя. В некоторых случаях используется свипирование самого пучка средствами коррекции/манипуляции пучка. В результате такого сканирования набирается детальная информация о плотности пучка в большом количестве точек внутри пучка, включая т.н. область гало пучка. Область гало пучка

представляет собой плато в области "хвостов" пучка (порядка пяти-шести сигма гауссового распределения), в котором плотность пучка перестает уменьшаться при удалении от центра пучка в соответствии с гауссовым законом распределения. Профилирование пучков, включая область гало, представляет сложную задачу, поскольку речь идет об изменениях плотности пучка на те же 5-6 порядков по сравнению с центральной зоной пучка.

В случае, если детальная информация о профиле пучка уже получена для эксплуатации ускорителя/накопителя часто требуется достаточно ограниченная информация о местоположении центра тяжести пучка и его поперечных размерах. Фактически широко используемые мониторы положения пучка представляют собой устройства, измеряющие с помощью электромагнитных полей пучка плотность пучка в двух точках в вертикальном направлении и в двух точках в горизонтальном направлении.

Для решения подобных задач с помощью датчиков вибрирующей струны были разработаны многострунные модификации таких датчиков. Например, для измерения местоположения пучка и его характерных размеров на электронном накопителе APS по синхротронному излучению, выходящему через терминаторный фланец одного из неиспользуемых каналов, был разработан 5-струнный датчик VWM-5S [51,52].

Поскольку синхротронное излучение сосредоточено в плоскости орбиты пучка, то измерялся только вертикальный профиль пучка (изменение плотности пучка в зависимости от вертикальной координаты). Характерные размеры пучка составляли 1-2 мм. Общий вид датчика представлен на Рис. 28. На данном рисунке указана рабочая апертура датчика около 8 мм. Датчик собран в цилиндрической оправе. Виден массив пяти струн с расстоянием 0.5 мм между ними.

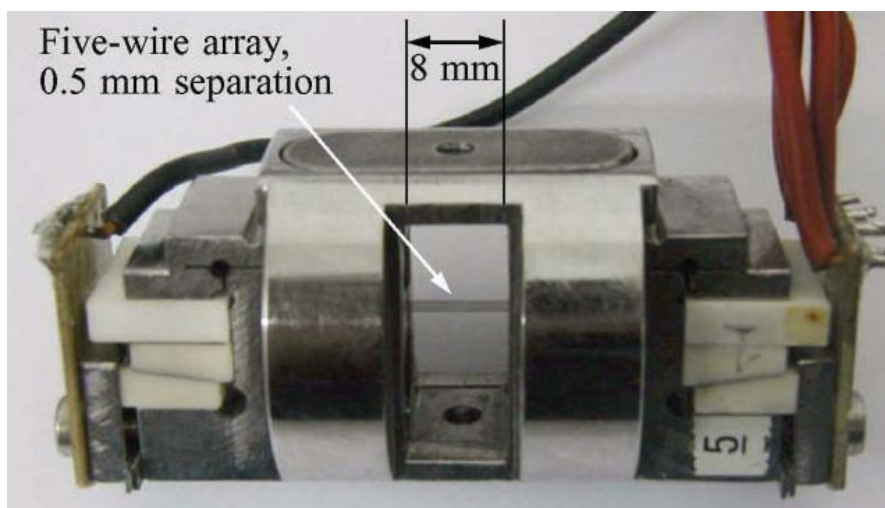


Рис. 28 Общий вид 5-струнного датчика.

Датчик был закреплен в медной скобе, установленной на медной платформе, с отверстием для прохождения пучка. Цилиндричность корпуса датчика давала возможность проворачивать датчик вокруг оси средней струны, уменьшая таким образом расстояние между проекциями струн вдоль направления пучка.

Длины всех струн составляли 36 мм. Струны были изготовлены из нержавеющей стали, прошедшей специальную термомеханическую обработку. Резонансные частоты струн лежали в диапазоне 4000-7000 Гц. Характерный коэффициент зависимости изменения частоты колебаний струны от ее температуры составлял 40 Гц/К (при резонансной частоте 4200 Гц). Максимальное изменение частоты, не сказывающееся на качестве колебаний, составляло около 1000 Гц, что соответствовало изменению температуры струны приблизительно на 25 К. Разрешение датчика по частоте составляло 0.00025 К, долговременная стабильность датчика в интервале времени 1 час составляла ± 0.00025 К и в интервале времени 24 часа ± 0.001 К. Вид закрепленного на терминаторном фланце

синхротронного канала электронного накопителя APS представлен на Рис. 29.

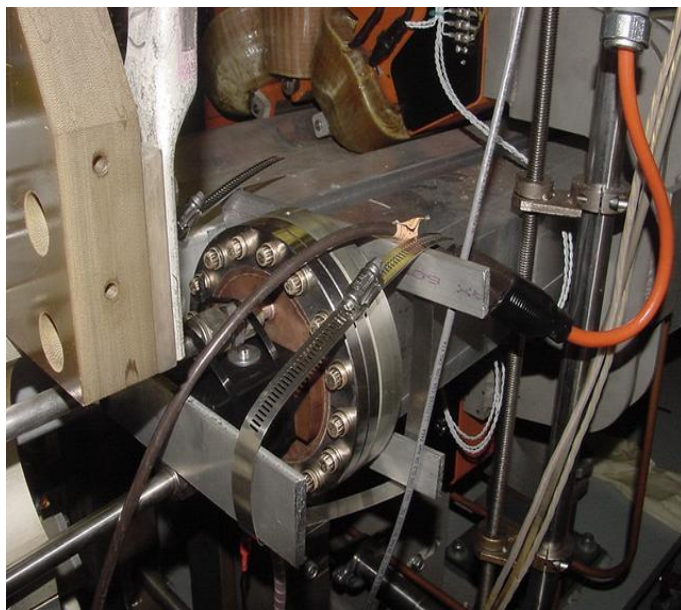
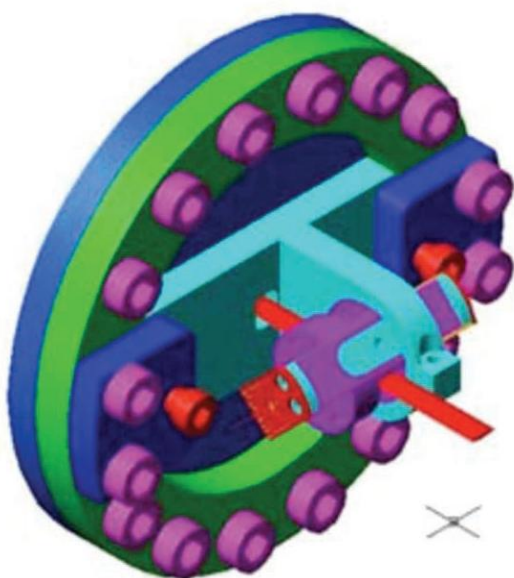


Рис. 29 Вид датчика на терминаторном фланце накопителя APS.

Результаты измерения профиля пучка синхротронного излучения, а также влияние факторов внешней среды на результаты измерения будут обсуждены в следующем параграфе.

§2. Влияние внешней среды на параметры струнных сканеров

Влияние внешней среды на параметры струнных сканеров вибрирующей струны сводятся к воздействию температуры окружающей среды на частоту колебаний струны резонатора сканера [58].

Кроме того балансовая температура струны определяется равенством между всеми механизмами теплоотвода, к которым относится также конвекционный отвод тепла со струны, т.е. фактором внешней среды. Оба

фактора влияют на чувствительность датчика, диапазон допустимых потоков измеряемого пучка, а также на быстродействие датчика.

Влияние температуры внешней среды на частоту датчика определяется формулой аналогичной (см. предыдущий параграф):

$$\Delta F / F = -\frac{E}{2\sigma}(\alpha_s - \alpha_B)\Delta T_{AMB}, \quad (2)$$

где α_B коэффициент теплового расширения материала, из которого изготовлена база струны ΔT_{AMB} изменение температуры окружающей среды. Интересно отметить, что при равенстве (или близости) параметров α_B и α_s зависимость частоты от температуры окружающей среды мала. Однако, при работе реального датчика должна учитываться также разница тепловых инерций струны и массивных частей датчика. Эти величины отличаются на много порядков. Как правило, изменения окружающей среды имеют медленный характер, в то время как объект измерения – пучок при сканировании изменяет долю частиц высаживаемых на струну достаточно быстро. Учитывая это обстоятельство, при восстановлении профиля измеряемого пучка может быть произведена коррекция по сдвигу частоты на входе и на выходе пучка, который обусловлен изменением температуры окружающей среды. Такая коррекция может производиться также по дополнительному термометру, измеряющему изменение температуры окружающей среды. Кроме того следует учесть, что, как правило, ускорители эксплуатируются в термостабилизированных условиях, так что эффект влияния температуры окружающей среды достаточно мал.

Более существенным является зависимость частоты и времени отклика датчика от среды, в которой происходят колебания струны.

Для многострунных датчиков возникает еще один канал влияния внешней среды - это теплопередача между струнами через конвекционные потоки, в случае если датчик используется в атмосфере.

Как пример применения многострунного датчика в атмосфере можно привести эксперимент на накопительном кольце APS [51]. Как отмечалось в предыдущем параграфе, пятиструнный датчик был установлен на терминаторном фланце неиспользуемого канала синхротронного излучения непосредственно в атмосфере. Измерялось вертикальное распределение синхротронного излучения, прошедшего медный фланец толщиной около 8 мм (см. Рис. 30).

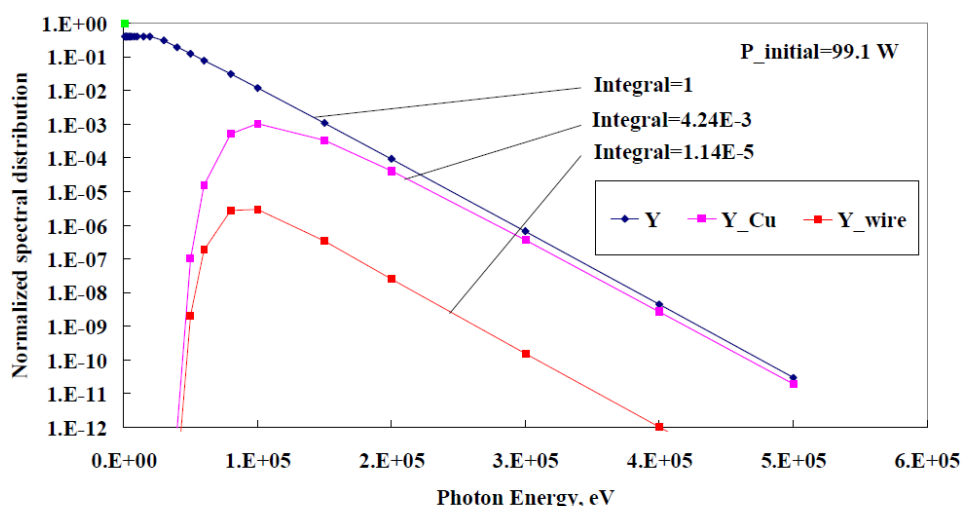


Рис. 30 Нормализованное спектральное распределение исходного излучения (Y), проходящего через медный фланец (Y_Cu) и поглощенное в струне (Y_wire).

Синхротронное излучение, соответствующее апертуре датчика VWM005 (примерно 8 мм) имело мощность 99.1 Вт (при токе 100 мА). С помощью специальных коэффициентов поглощения излучения [59], было рассчитано распределение синхротронного излучения после прохождения через медный

фланец. Полная мощность синхротронного излучения после прохождения слоя 6мм меди – составляла около 420 мВт, причем спектр излучения из области 10 кэВ рентгеновского излучения смещался в область сотен кэВ. Наконец было рассчитана мощность, непосредственно поглощаемая струной в виде тепла, которая составила около 13 мВт. Данной мощности вполне достаточно для профилирования датчиком пучка жестких рентгеновских лучей.

На Рис. 31 представлены результаты эксперимента. Сканирование пучка электронов в накопителе производилось с помощью корректирующих линз системы фокусировки накопителя. Как видно профили со струн не совпадают друг с другом. Это несовпадение обусловлено тепловым взаимодействием струн друг на друга.

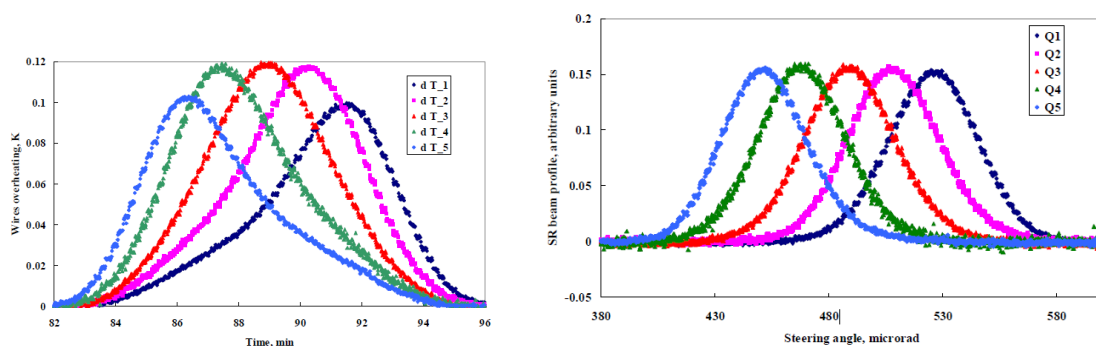


Рис. 31 а) исходные экспериментальные профили при свипировании электронного пучка с помощью магнитных линз фокусирующей системы ускорителя. б) Восстановленные профили пучка синхротронного излучения с учетом взаимного теплового влияния.

Восстановленные с учетом теплопередачи между струнами в рамках линейной матрицы коэффициентов передачи тепла профили синхротронного излучения представлены на Рис. 31 б) [51].

Чтобы исследовать тепловую взаимосвязь струн в атмосфере, были проведены эксперименты с пятиструнным датчиком, в которых источник тепла моделировался постоянным током, поданным на одну из струн. Далее по изменению частоты струн измерялось перераспределение тепла по остальным струнам [58]. В Табл. 9 представлены результаты эксперимента, в котором каждой строчке таблицы соответствовал ток примерно 10 мА, подаваемый поочередно на каждую из пяти струн (по техническим причинам ток на струну 2 не подавался). Струны перенумерованы по взаимному расположению. Расстояние между струнами 0.5мм.

Табл. 9 Результаты изучения тепловой взаимосвязи многострунного датчика.

Струна1	Струна2	Струна3	Струна4	Струна5
0,255	-	0,052	0,031	0,012
-	-	-	-	-
0,050	-	0,283	0,099	0,051
0,029	-	0,101	0,265	0,090
0,019	-	0,051	0,090	0,247

Значения с хорошей точностью (0.001К) симметричны относительно обеих диагоналей таблицы, что доказывает, что смещение частот соседних струн обусловлено именно взаимовлиянием струн через конвективную тепловую связь.

§3. Модификации датчика вибрирующей струны

Датчики вибрирующей струны, описанные в предыдущем параграфе, имеют ограничения по полезной апертуре пучка, так как часть длины струны

перекрывается системой магнитного поля, обеспечивающей возбуждение собственных колебаний. Это приводит к ограничениям на поперечный размер измеряемых пучков. Для измерения пучков большого диаметра была разработана широкоапертурная модификация датчика, содержащая две струны и коромысельную конструкцию, передающую натяжение мишенной струны, подвергаемой облучению пучка, на измерительную вибрирующую струну. Такая конструкция позволила использовать струны длиной до 80 мм, причем без ограничений апертуры из-за магнитных полюсов.

Другой практической необходимостью часто является быстрое измерение профилей пучков, например, в случае, когда интенсивность пучка непостоянна или интенсивность пучка приводит к перегреву струны и ее разрушению при медленном сканировании. Модификация датчика, в которой вибрирующая струна используется как резонансная мишень, очень перспективный прибор, который позволяет существенно ускорить процесс сканирования. В перспективе представляется возможной двумерная томография пучков со сложной структурой поперечного сечения [56].

Широкоапертурная модификация

В основной конструкции датчика вибрирующая струна используется как мишень для пучка частиц. Вибрирующая струна должна частично находиться в магнитном поле для генерации колебаний, и данное требование уменьшает эффективную апертуру датчика. Через струну должен проходить переменный ток для генерации и поэтому материал струны должен быть проводником. Это ограничивает использование диэлектрических материалов с хорошей теплопроводностью в качестве материала струны. Избежать данных ограничений, можно используя две механически связанные струны, одна из которых - вибрирующая, а другая - мишень взаимодействия с пучком.

Данная идея была предложена в [56] и реализована в [60]. Первая модификация датчика на вибрирующей струне с отдельными струнами изображена на Рис. 32.

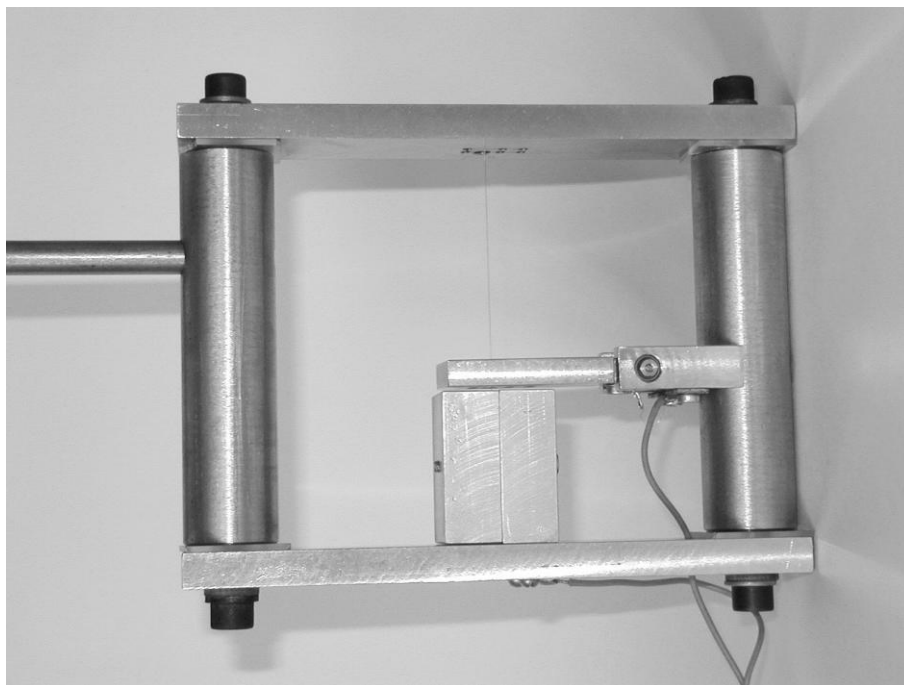


Рис. 32 Первая модификация датчика на базе вибрирующей струны с отдельными струнами.

В данной модификации струны были связаны балансирующим коромыслом на подшипниках. К сожалению, данный тип датчика за счет этого приобрел большие размеры, что привело к трудностям установки в вакуумной камере (поперечный размер датчика - 130x145мм).

В продвинутой модификации с разделенными струнами эта проблема была решена внедрением единого коромысла, к обоим концам которого прикреплялись вибрирующая и измерительная струны. Это позволило существенно уменьшить размеры датчика и в качестве измерительной струны использовать струны из любых материалов, в том числе диэлектрические. В случае, если натяжение измерительной струны меняется

вследствие взаимодействия с пучком, это натяжение соответствующим образом передается на измерительную струну, приводя к смещению резонансной частоты. Схематический вид датчика изображен на Рис. 33.

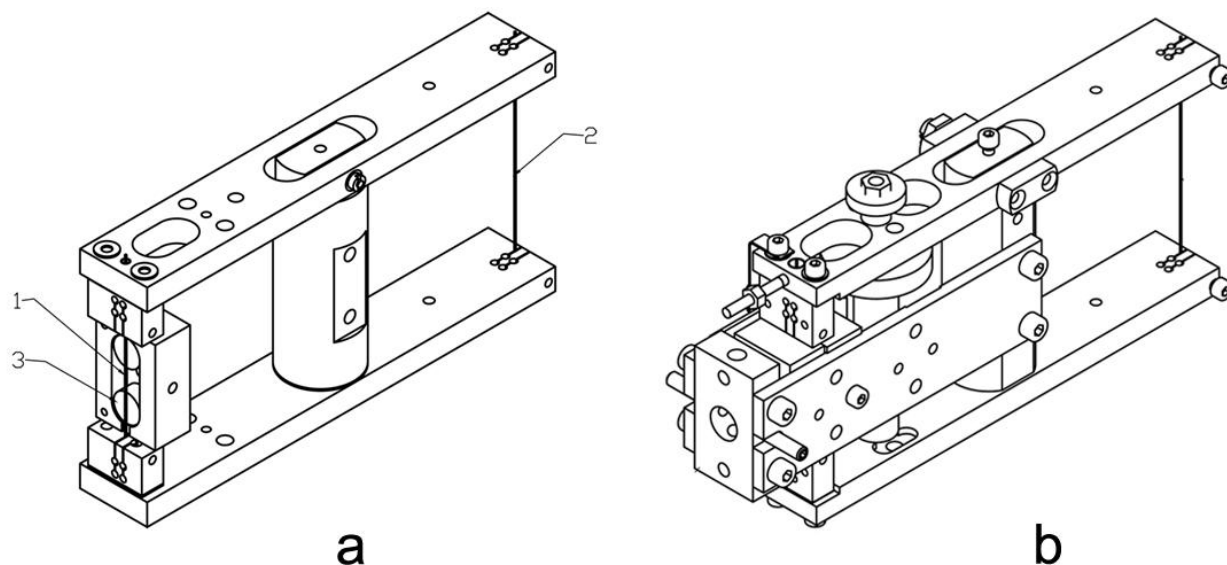


Рис. 33 а) основные части датчика: 1 - вибрирующая струна, 2 - мишенная струна, 3 - магниты, обеспечивающие генерацию колебаний струны; б) датчик в сборе.

Датчики данного типа позволяют исследовать профили пучков с характерными размерами вплоть до 50-60 мм. Данная задача актуальна для ускорителей протонов для прикладных применений.

Было 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. 34 приведен широкоаперный датчик в вакууме, измерительная струна которого раскалена постоянным током 1.3 А.

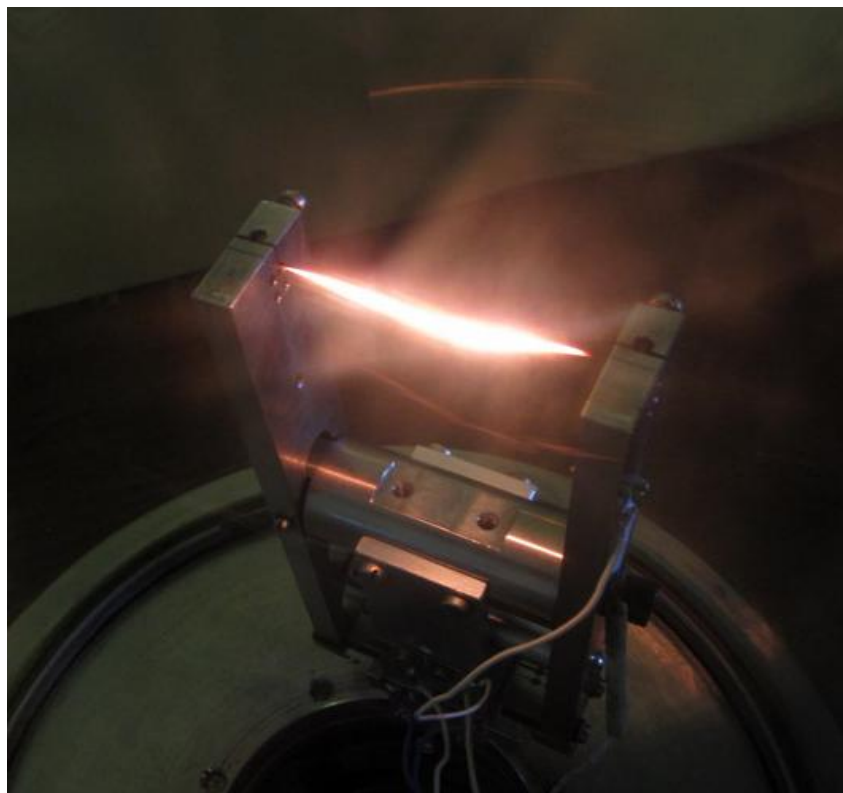


Рис. 34 Вид датчика с раздельными струнами. На измерительную струну подается постоянный ток 1.3 А, имитирующий высаживание на струну мощности около 6000 мВт.

На Рис. 35 приведены результаты проведенного исследования по определению предельных величин использования датчика.

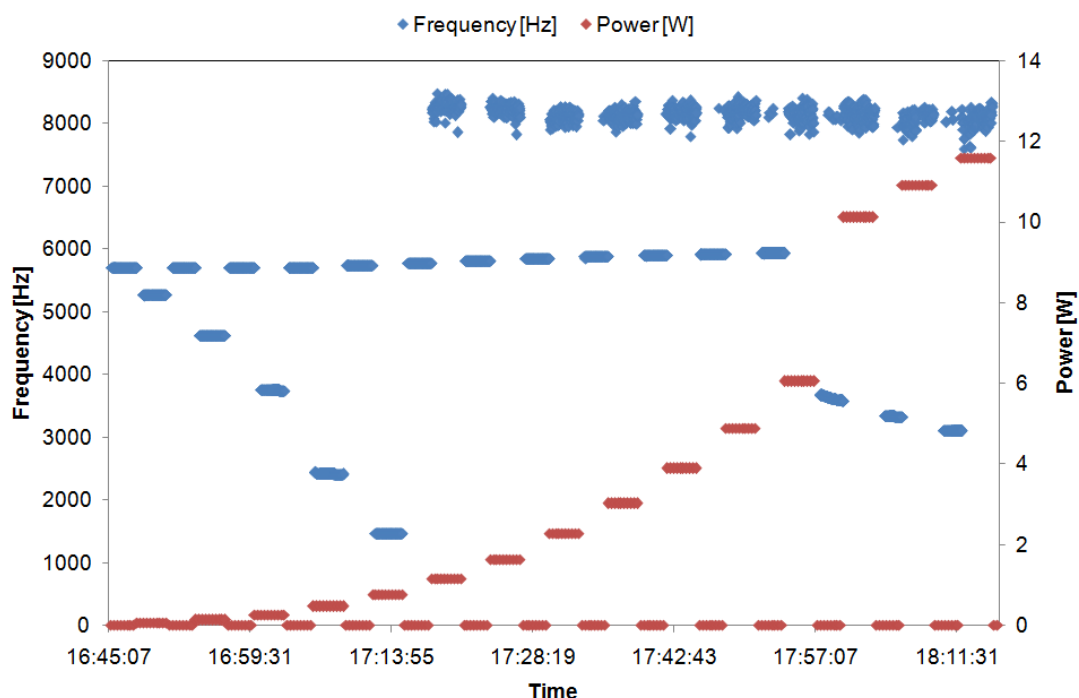


Рис. 35 Зависимость частоты вибрирующей струны: синими точками отмечены значения частоты, красными - мощности, высаживаемой на струну. При мощности 0.76 Вт частота струны падала с 6000 Гц до 1000 Гц и становилась нестабильной. После снятия мощности прогрева струна восстанавливалась до исходного состояния для значений высаживаемой 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 (см. Рис. 36).

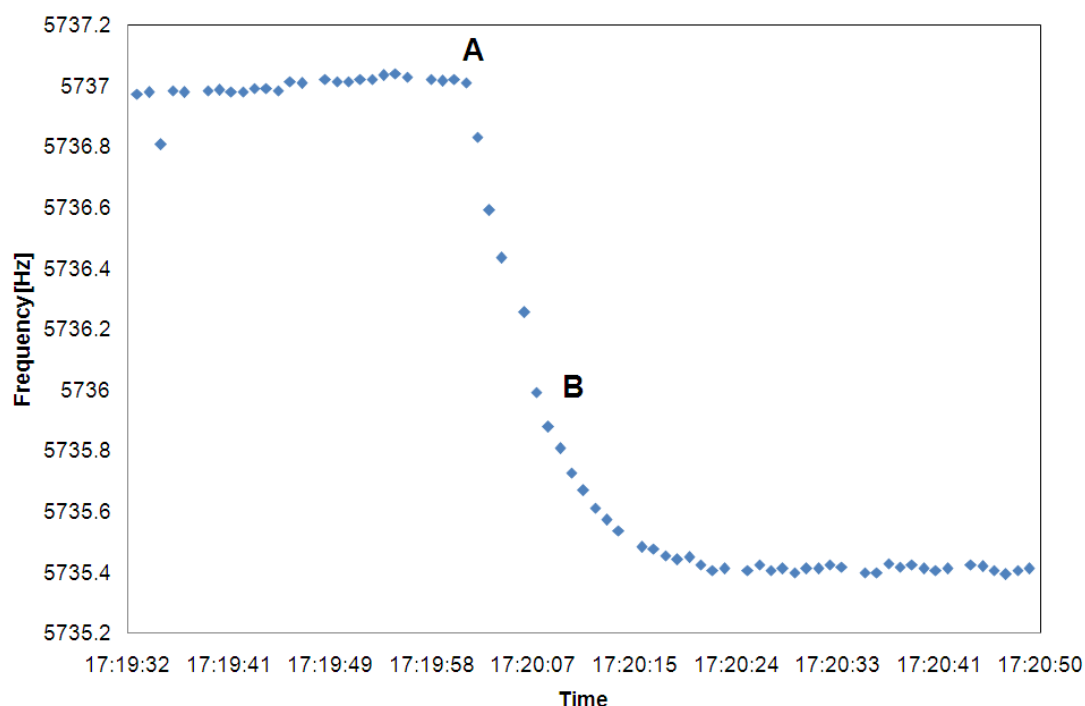


Рис. 36 Экспериментальные измерения по определению характерного времени отклика дали величину около 6.7 с для широкоапертурного датчика с длиной измерительной струны около 60 мм.

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) [54]. Планируется использование датчика для измерения гало протонного пучка установки Project-X Injector Experiment (PXIE), которая является прототипом мульти-МВт сверхпроводящих протонных ускорителей прикладного назначения с пучками, больших размеров.

Широкоапертурный датчик вибрирующей струны обычного типа с длиной струны 80 мм был успешно использован для измерения протонного пучка с характерными поперечными размерами 30-50 мм [61] ускорительного комплекса КОМАС [62,63]. Данный ускорительный комплекс предназначен

для утилизации протонных пучков с энергией 20 МэВ и 100 МэВ с помощью десяти пучковых выводов в различных прикладных исследованиях. Четыре из этих пучковых выводов с наибольшими токами (со средним током до 4.8 мА для 20 МэВ и со средним током 1.6 мА для 100 МэВ) предназначены для производства радиоизотопов. Широкоапертурный датчик вибрирующей струны был опробован на тестовом пучке протонов с энергией 20 МэВ и полным количеством протонов в одном импульсе 10^{11} . Частота повторяемости импульсов составляла 1 Гц. Максимальное смещение частоты при центральном положении струны составило 0.25 Гц, что соответствовало прогреву струны в этом положении на 0.065 К. Предполагается, что исследования по измерению профилей протонных пучков с помощью датчиков вибрирующей струны будут продолжены и после окончательного ввода комплекса в эксплуатацию эти датчики будут применяться как полезное диагностическое средство, в том числе и для оптимизации процессов производства радиоизотопов.

Вибрирующая струна как резонансная мишень

Датчики вибрирующей струны, в которых измерение количества падающих на струну частиц измеряемого пучка производится посредством измерения изменения температуры струны как показано выше обладают хорошей точностью и большим динамическим диапазоном измерений (почти шесть порядков). Однако, тепловой принцип, положенный в основу сканера, требует стабилизации процесса термализации струны, которое составляет доли секунд, в случае использования датчиков в атмосфере, и секунд в вакууме. Данное обстоятельство делает невозможным быстрое измерение профиля и ограничивает возможность измерения пучков с большим током. В [56] была предложена модификация датчиков вибрирующей струны, в

которых формирующими измерение сигналами служат рассеянные на струне вторичные частицы/фотоны, однако, в качестве мишени используется вибрирующая струна, а измерения производятся синхронно с колебаниями струны. Датчики такого типа названы датчики вибрирующей струны с резонансной мишенью (ДВС-РМ). Идея метода проиллюстрирована на Рис. 37.

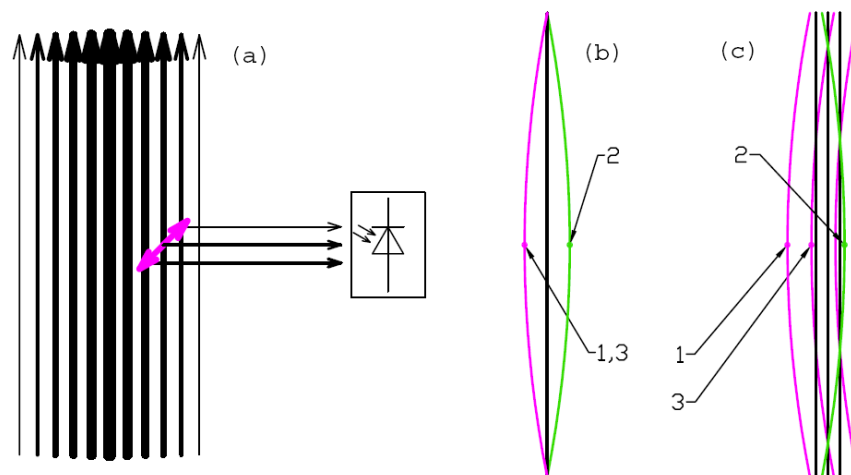


Рис. 37 Принципа действия датчиков вибрирующей струны с резонансной мишенью (ДВС-РМ). На рис. (а) вертикальными линиями представлен пучок с неоднородной плотностью производится вычитание измерений в точках 1, 3 и 2 (рис. (b)). На рис. (с) представлена движущаяся вибрирующая струна.

Пучок с неоднородным профилем представлен на Рис. 37(а) линиями с разной толщиной. Вибрирующая струна утрированно изображена фиолетовым отрезком со стрелками. Фактически на рисунке представлена центральная точка струны, направленной перпендикулярно плоскости рисунка. При разных фазах колебаний струны струна находится в различных точках этого отрезка и отраженные от струны фотоны имеют соответственно разную интенсивность. Отраженные фотоны регистрируются быстрым

фотодиодом. Сигнал с вибрирующей струны служит запускающим сигналом измерений, когда струна предельно отклоняется от равновесного положения. Эти позиции обозначены цифрами 1, 2, 3 на Рис. 37(b). Разность измеряемых сигналов в положениях 1 и 2 пропорциональна разнице в интенсивностях пучка, при этом фон всех остальных фотонов компенсируется. Смещая вибрирующую струну в новые положения, фактически регистрируется градиент профиля пучка. Частоты колебаний струны составляют несколько кГц, так что последовательные измерения фотодиода разделены промежутком времени много меньше 1 мс. Сканирование пучка с размером несколько мм при этом можно произвести за несколько десятков мс. Такое быстрое сканирование дает возможность ставить задачи томографического восстановления сложных двумерных профилей. На Рис. 37(c) приведены положения вибрирующей струны в случае, когда точки крепления струны движутся. Скорость этого движения много меньше скорости струны при ее колебаниях. Общее движение струны можно учитывать математически.

Тестовые эксперименты разработанного датчика ДВС-РМ были произведены в работе [56] на фотонном пучке полупроводникового лазера (LED Lenser V9, длина волны 650 nm). Для упрощения механической системы сканирования ДВС-РМ был закреплен на жестком маятнике, совершающем затухающие колебания (длина маятника 890 мм). Схема эксперимента представлена на Рис. 38.

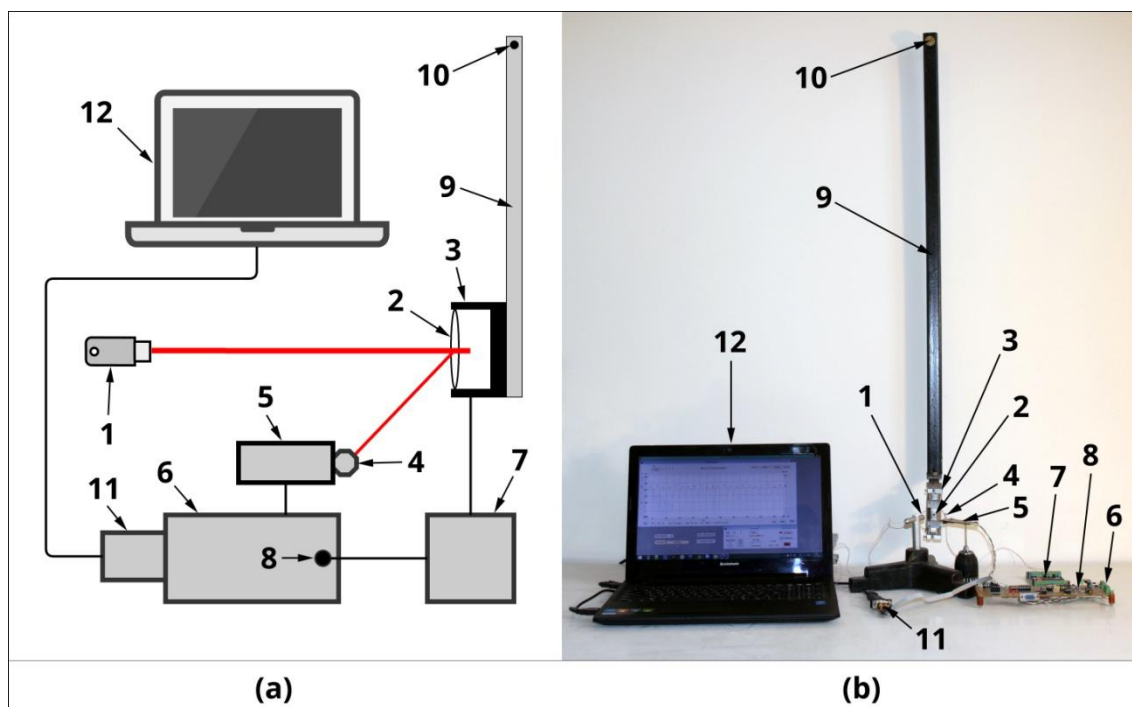


Рис. 38 Блок диаграмма эксперимента (a) и фотография экспериментальной установки (b): 1 – лазер, 2 – вибрирующая струна, 3 – датчик, 4 – фотодиод, 5, 6, 7 – электронные платы измерения фотодиода, 8 – стробоскопические сигнал запуска измерений фотодиода, 9 – маятник, 10 – ось маятника, 11 – RS232 интерфейс, 12 – компьютер.

В качестве датчика отраженных от струны фотонов использовались быстрые кремниевые фотодиоды и быстродействием по фронтам сигнала около 100 нс. Мощность светового потока составляла около 14 мВт/см².

В одном из экспериментов было произведено 14 полных сканирований. Экспериментальные результаты были обработаны на предмет коррекции временных сигналов с положением струны в пространстве (колебания маятника, служившие механизмом сканирования, затухали со временем). Была учтена также неравномерность движения маятника-сканера при прохождении измеряемого пучка лазера. Дифференциальные сигналы были

проинтегрированы. Реконструкция всех четырнадцати профилей пучка приводится на Рис. 39.

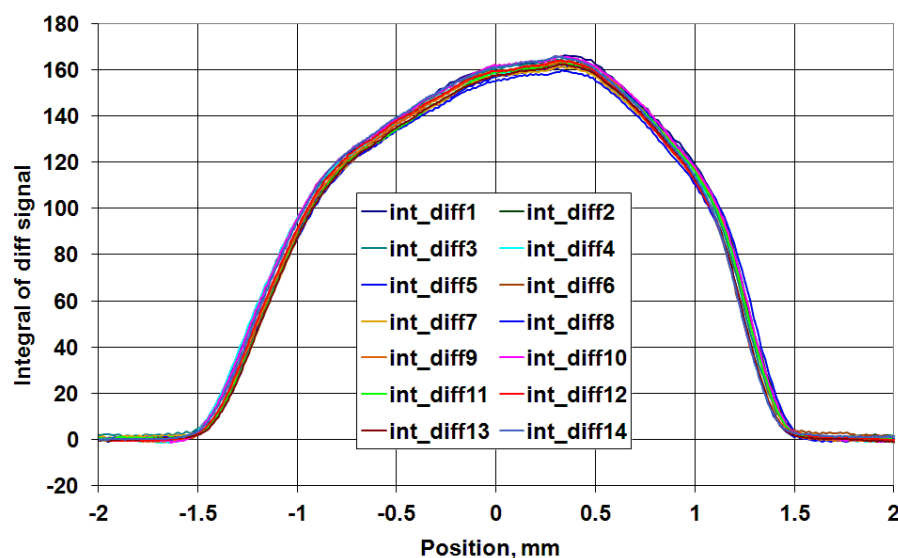


Рис. 39 Реконструкция четырнадцати профилей лазерного пучка с помощью датчика ДВС-РМ.

§4. Измерение нейтронных пучков с помощью струны с гадолиниевым покрытием

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.

Проект многоцелевой установки Intense Neutron Generator (ING) в Chalk River Laboratory of Atomic Energy of Canada для производства изотопов с помощью нейтронных пучков большой интенсивности обсуждался еще в 60-х годах прошлого столетия [64]. Метод получения радиоизотопов, таких как ^{99}Mo , ^{90}Y , ^{64}Cu и ^{67}Cu , с помощью нейтронов, полученных с использованием дейтронных пучков на ускорителе GRAND описывается в [65]. В данной

работе использовался поток нейтронов с энергией 14 МэВ, который был получен с помощью интенсивного потока дейтронов с энергией 40 МэВ в реакции $^{nat}\text{C}(\text{d},\text{n})$. Также, в [66] обсуждается создание источника резонансных и эпитепловых нейтронов высокой интенсивности ($>10^{16}$ нейтрон/с) для производства изотопов и нейтронной терапии. Источник основан на взаимодействии электронов с энергией 35 - 50 МэВ с жидкометаллической мишенью из галлия.

Таким образом, измерение пространственного распределения нейтронных пучков также представляет собой актуальную и интересную задачу.

У нейтронов есть интересные применения в медицине, как в лечении рака, так и в разработке ультра-чувствительных исследований внутренней и внешней химической среды человека [67,68,69,70,71]. Существует несколько медицинских центров специализирующихся на нейтронной терапии [72]. Контроль пространственного распределения и интенсивности нейтронного пучка являются очень важной задачей в данной области. Более того, есть необходимость в устройствах, которые могут в реальном времени измерять интенсивность нейтронных пучков.

Большая часть существующих нейтронных источников основана на ядерных реакторах с высокими временно-усредненными нейтронными потоками. В данных реакторах используются старые технологии, как для получения источников, так и в инструментах измерений. Другим типом нейтронных источников являются так называемые установки на ядерных реакциях расщепления (spallation facilities), в которых нейтроны получают методом бомбардировки мишеней с тяжелыми атомами ядрами высокоэнергичным пучками протонов. Расщепительные источники могут

быть как импульсными, так и непрерывного действия. В будущем планируется запуск нескольких новых нейтронных источников.

Большое значение имеет формирование нейтронов в пучок с большим потоком и хорошо определёнными и точно контролируемыми параметрами интенсивности, угловой расходимости, точными геометрическими координатами и размерами. На сегодняшний день интенсивности нейтронных потоков достигают 10^{13} - 10^{15} нейтр./($\text{см}^2 \cdot \text{с}$). Новой задачей является последующее увеличение интенсивности нейтронных пучков.

Нейтроны не обладают электрическим зарядом, поэтому измерение нейтронных пучков связано с их конвертацией в заряженные частицы или излучение. Косвенность таких методов снижает эффективность измерения и затрудняет прецизионное измерение параметров распределения нейтронных пучков.

На сегодняшний день все известные детекторы медленных нейтронов основаны на преобразовании нейтронов в заряженные частицы [73]. После данного преобразования обычно используются следующие методы: пропорциональные газовые счетчики, ионизационные камеры, сцинтилляционные детекторы и полупроводниковые детекторы. Как материал для преобразования часто используются He, Li, B и Gd из-за их больших сечений взаимодействий с нейтронами. Помимо полной интенсивности нейтронных пучков обычно требуются также сведения о пространственном распределении нейтронов. Тем не менее, методы, описанные выше, предоставляют данные сведения неявным образом, а детекторы имеют сложное строение.

Для измерения профилей потока нейтронов предложен новый тип датчика на базе вибрирующей струны.

Нейтронный датчик вибрирующей струны

^{157}Gd имеет самое большое сечение взаимодействия с нейтронами в периодической таблице. Изотопы ^{155}Gd и ^{157}Gd могут поглощать нейтроны с широким диапазоном энергий: у ^{155}Gd есть 104 резонансных линий в диапазоне 0,0268-168 эВ а у ^{157}Gd – 60 в диапазоне 0,0314-307 эВ. Реакция захвата ^{157}Gd приводит к сложным переходам электронов и излучению большого количества гамма-квантов. Кроме того происходит вытеснение электронов со внутренней оболочки, которые вызывают эмиссию Оже-электронов, сопровождающейся эмиссией мягких рентгеновских лучей и фотонов. Полная информация о сечениях нейтронного захвата для разных элементов представлена в [74]. Для сравнения заметим, что ^{10}B имеет 3840 барн, ^{16}O – 0.00019 барн, ^{12}C – 0.0035 барн, ^1H – 0.333 барн, и ^{14}N – 1.83 барн сечения нейтронного захвата.

Изотопы Gd обладают разными сечениями нейтронного захвата σ . В Табл. 10 приведены значения сечений взаимодействий с тепловыми нейтронами с энергией 0,025 эВ [75].

Табл. 10 Сечения нейтронного захвата изотопов Gd

	% в нат. Gd	Сечение, барн	Сечение, см^2
Нат. Gd	100	48890	4.889E-20
^{152}Gd	0.2	1100	1.1E-21
^{154}Gd	2.2	90	9E-23
^{155}Gd	14.7	61000	6.1E-20
^{156}Gd	20.6	2	2E-24
^{157}Gd	15.68	255000	2.55E-19
^{158}Gd	24.9	2.4	2.4E-24
^{160}Gd	21.9	0.8	8E-25

Сечение захвата теплового нейтрона у ^{157}Gd в 65 раз больше чем сечение захвата у ^{10}B . Захват теплового нейтрона со стороны ^{157}Gd образует каскад гамма-излучения (один или более) с общей энергией 7.937 МэВ. В целом при захвате 100 нейтронов излучаются до 139 гамма фотона с энергиями в диапазоне от 79.5 до 7857.670 КэВ. Эти фотоны имеют широкий диапазон энергий со средним значением 2.394 МэВ. Атом Gd приходит в невозбужденное состояние, излучая Оже-электроны и характерное гамма-излучение [76].

Предложены два типа нейтронных датчиков вибрирующей струны (НДВС): миниатюрный датчик НДВС малых размеров с диаметром струны приблизительно 10 мкм со слоем гадолиниевого покрытия около 2 мкм толщиной, а также датчик НДВС 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.

Все продукты реакций взаимодействия нейтронов с атомами гадолиния в дальнейшем взаимодействуют с материалом струны и оставляют определенную долю энергии, нагревая ее. Точное вычисление вклада большого количества вторичных частиц и излучения при этом составляет очень сложную задачу. Для энергопередачи со стороны электронов и рентгеновского излучения следуя [76] мы принимаем оценку порядка 70 кэВ. Важно отметить, что тепловыделение в материале струны происходит на

расстояниях порядка нескольких микрометров, так что процессы нагрева струны похожи для струн миниатюрных датчиков и датчиков средних размеров. Для оценки вкладов в теплопередачу гамма-квантов с энергией 7.9 МэВ в качестве величины коэффициента поглощения мы приняли значение для вольфрама $8.63 \times 10^{-1} \text{ см}^{-1}$ ($\mu/\rho = 4.47 \times 10^{-2} \text{ см}^2/\text{г}$ [77]). Оба упомянутых механизма теплопередачи дают вклад со стороны одного нейтрона $\varepsilon_n = 140$ кэВ для датчика НДВС средних размеров и 77 кэВ для миниатюрных датчиков (величины не зависят от длины струны).

Расчеты [57] показывают (при максимальном смещении частоты датчика на 1000 Гц и точности измерений 0.01 Гц), 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.

Основное преимущество предложенного типа датчика состоит в хорошем пространственном разрешении профиля нейтронного пучка, определяющимся диаметром струны. Миниатюрные датчики могут служить портативными детекторами нейтронов.

ГЛАВА 4. ВОССТАНОВЛЕНИЕ МИШЕНИ ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ И КОНТРОЛЬ РАДИОХИМИЧЕСКОЙ ЧИСТОТЫ

После облучения мишени полученный изотоп ^{99m}Tc извлекается экстракционным методом [78]. В данном методе триоксидмолибдена MoO_3 растворяется в щелочном растворе $\text{KOH}+\text{K}_2\text{CO}_3$ образуя K_2MoO_4 и смешивается с метил-этил-кетон (МЭК), который соединяется с имеющимся в растворе ^{99m}Tc [36]. Два этих раствора разделяются в экстракторе. Важно заметить, что в циклотроне облучается металлический молибден, который не растворяется, и для того чтобы растворить его в щелочном растворе необходимо молибден окислить до триоксидамолибдена MoO_3 . Окисление возможно произвести перекисью водорода H_2O_2 . После разделения важной задачей является восстановление молибдена из щелочного раствора до металлического состояния для повторного облучения. Процесс восстановления до металлического молибдена происходит в несколько этапов – восстановление MoS_3 из щелочного раствора, восстановление до MoO_3 из MoS_3 и восстановление дометаллического Mo из MoO_3 . Предлагаемая методика регенерации MoO_3 из щелочных растворов позволяет получать MoO_3 с выходом не менее 95% (потери не более 5%). Опробованные другие методики регенерации MoO_3 (через аммиачные соединения и пр.) дают сравнительно низкий выход целевого продукта, хотя методически они проще.

§1. Химическое восстановление облученной мишени до MoS_3

После экстракции $^{99\text{m}}\text{Tc}$ необходимо восстановить Mo из щелочного раствора, в котором молибден присутствует в виде K_2MoO_4 . 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. Внутренний вид вытяжного шкафа приведен в Рис. 40.

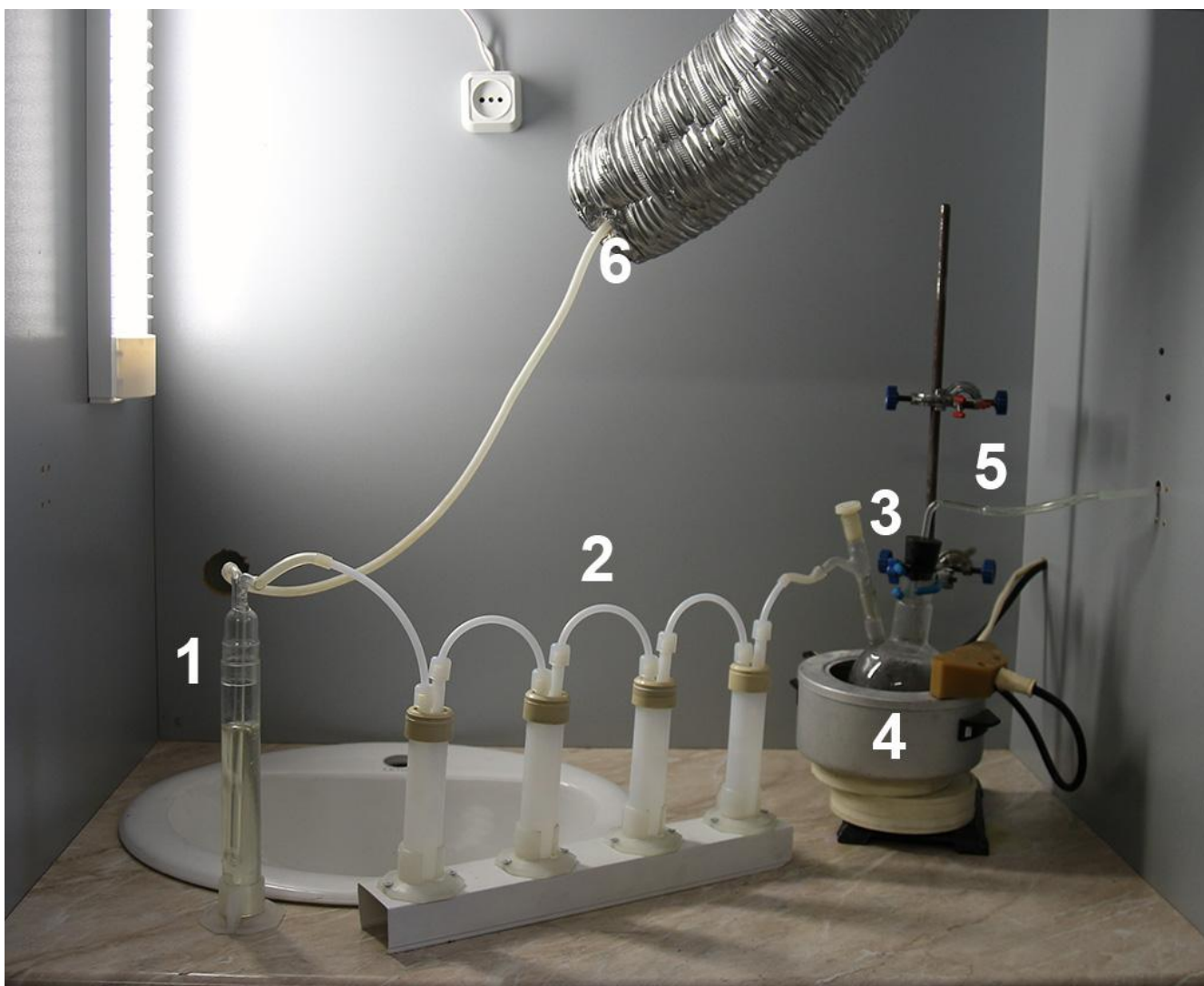


Рис. 40 Вытяжной шкаф, в котором производилась подача сероводорода. 1 – барботер с щелочным раствором, 2 – барботеры, 3 – колба с FeS , 4 – водяная баня, 5 – трубка подачи соляной кислоты, 6 – вытяжное отверстие.

Соляная кислота находлась в склянке, прикрепленной снаружи вытяжного шкафа. Кислота подавалась в вытяжной шкаф через автоматическое реле, которое контролировалось через блок управления. Склянка с соляной кислотой изображена на Рис. 41. Блок управления

автоматической подачи соляной кислоты и терморегулятора водяной бани для колбы с FeS изображен на Рис. 41.

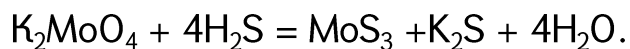


Рис. 41 Слянка с соляной кислотой, которая подавалась в колбу с сульфидом железа.



Рис. 42 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. Барботер с щелочным раствором после процесса сульфидирования изображен на Рис. 43.



Рис. 43 Барботер с щелочным раствором изменившим цвет после сероводорода через него.

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:



Реакция нейтрализации протекала бурно с сильным газовыделением. Процесс проводился под тягой. Соляная кислота подавалась до полной нейтрализации раствора, т.е. до прекращения газовыделения при подаче HCl . При этом, постепенно образовывался рыхлый коричнево-черный осадок

MoO_3 . После оседания осадка раствор полностью осветлялся. Результат нейтрализации щелочного раствора изображен на Рис. 44.

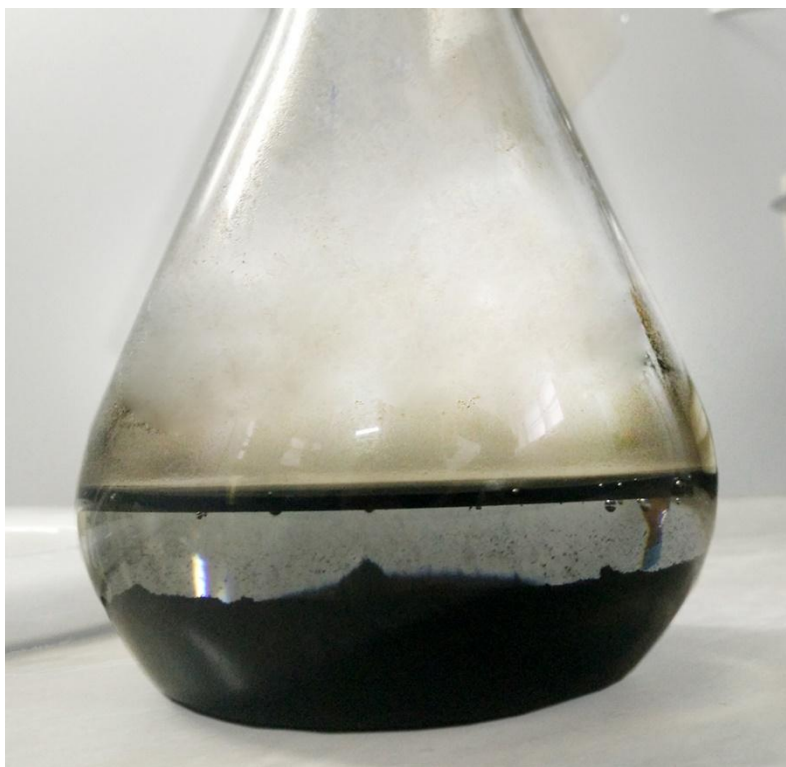


Рис. 44 Результат нейтрализации щелочного раствора.

Осадок отмывался дистиллированной водой от ионов хлора. Промывка осадка проводилась деконцентрацией раствора. Процесс промывки осадка сульфида молибдена изображен на Рис. 45.



Рис. 45 Процесс промывки осадка сульфида молибдена дистиллированной водой.

Степень отмывки определялась отрицательной реакцией 0.1 N AgNO_3 на ион хлора. Для определения отбиралось несколько капель фильтрата в пробирку и добавлялось несколько капель 0.1 N раствора нитрата серебра. Появление мути означало наличие ионов хлора, при этом промывка продолжалась до отсутствия мути в определяемой пробе фильтрата.

§2. Восстановление MoS_3 до MoO_3

Для второго и третьего этапа восстановления 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 (K-Туре). Печь была оснащена температурным контроллером (см. Рис. 46).

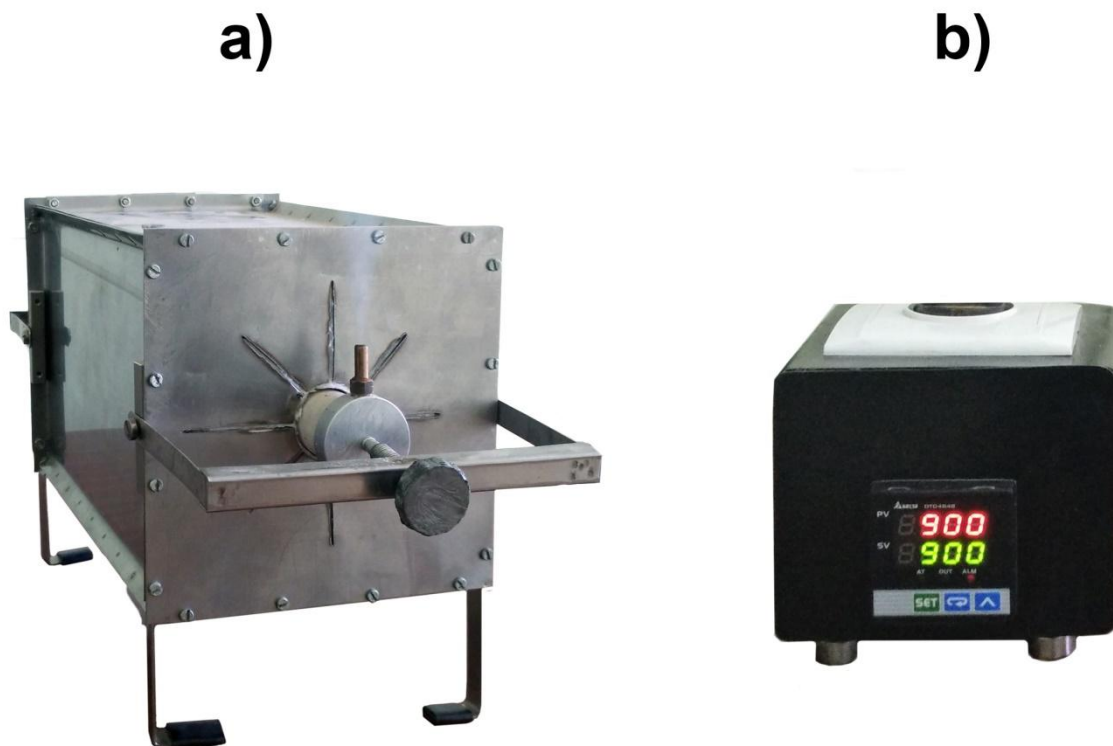


Рис. 46 а) Высокотемпературная лабораторная печь для восстановления Mo б) блок управления печи.

Для проведения восстановления в высокотемпературной печи была разработана специальная экспериментальная установка, изображенная на Рис. 47.

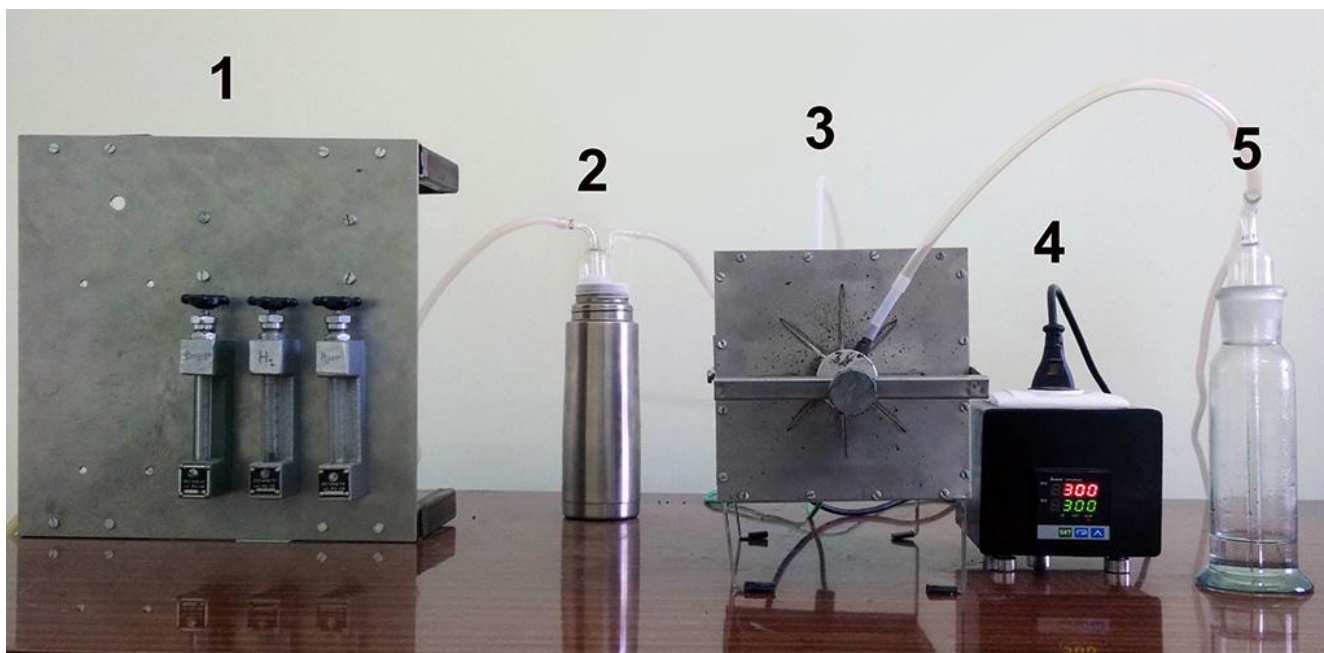
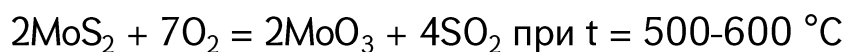
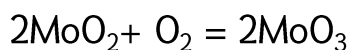
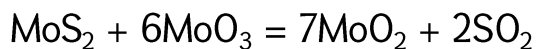


Рис. 47 Экспериментальная установка для восстановления MoS_3 до MoO_3 и MoO_3 до Mo : 1–смеситель с потокометрами газа, 2–ловушка охлаждаемая жидким азотом для нейтрализации влажности газа входящего в печь, 3–высокотемпературная печь, 4–блок управления высокотемпературной печи, 5–барботер для дополнительного контроля потока выходящего газа из печи.

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



Параллельно проходили реакции:



В результате был получен пек бело-серого цвета который впоследствии измельчался до порошкообразного состояния (см. Рис. 48).

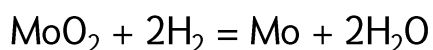
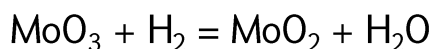


Рис. 48 Результат восстановления сульфида молибдена MoS_3 до оксида молибдена MoO_3 .

§3. Восстановление MoO_3 до Mo

Шестивалентные соединения молибдена даже в кислой среде могут быть восстановлены до металлического состояния только сильными восстановителями, такими как водород при высоких температурах. С этой целью порошок MoO_3 прокаливался в печи при подачи потока водорода.

Эффективное восстановление до Mo происходит при температурах выше 800 °С. Так как температура плавления триоксида молибдена–795 °С, восстановление можно производить происходит в двух последующих режимах:



Температурный режим, при котором прокаливается порошок MoO_3 в высокотемпературной печи изображен на Рис. 49.

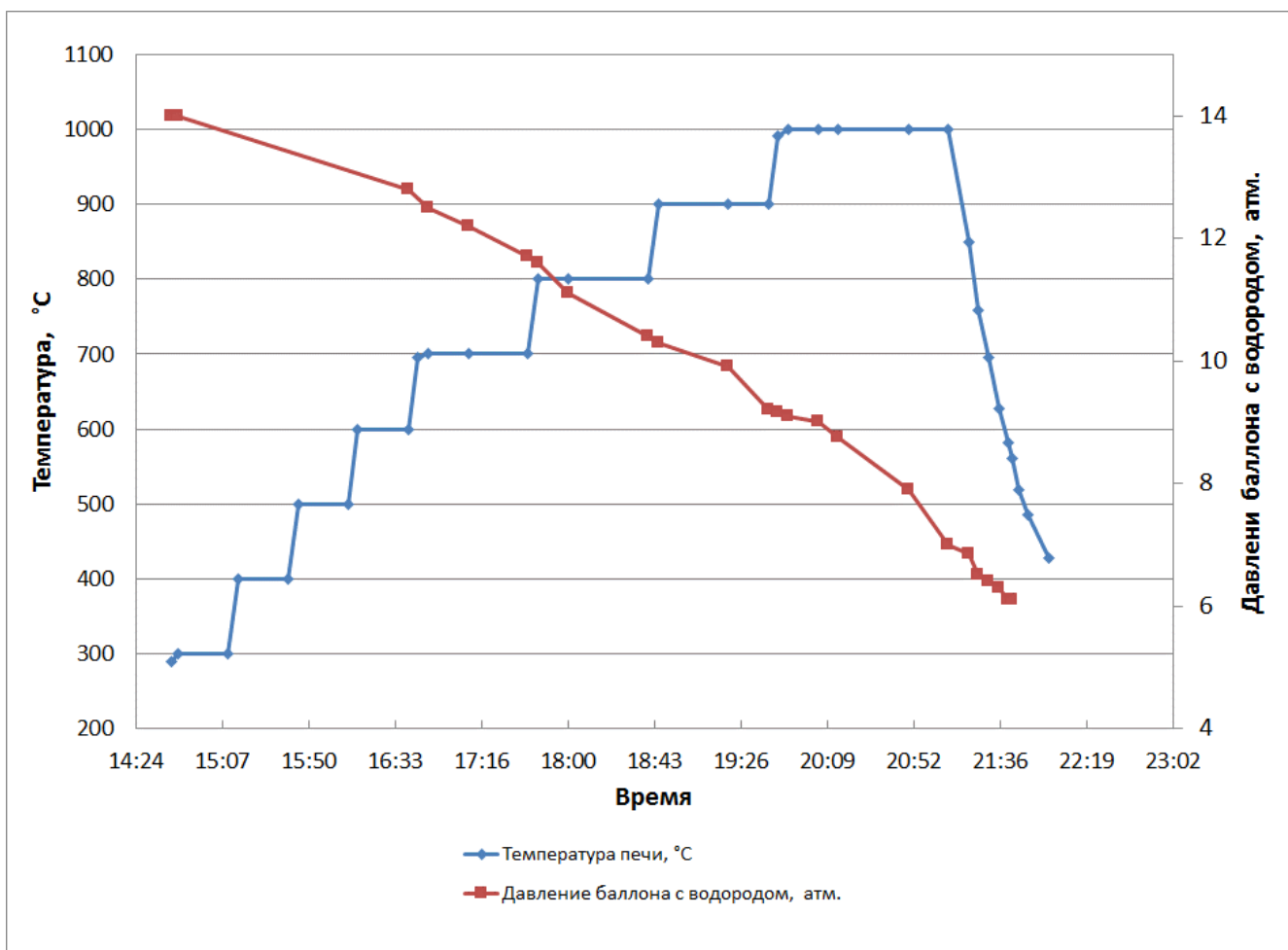


Рис. 49 Температурный режим прокаливании порошка MoO_3 и давление баллона с водородом.

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. 50.



Рис. 50 Результат восстановления оксида молибдена MoO_3 до металлического Mo водородом.

§4. Контроль радиохимической чистоты с помощью гамма-сканера

Для контроля радиохимической чистотой полученных медицинских изотопов материала был изготовлен специальный гамма—сканер [79].

Радиохимической чистотой называется отношение активности радионуклида, который присутствует в препарате в устойчивой химической форме основного вещества, к общей активности радионуклида в этом препарате, выраженное в процентах. Независимо от метода получения изотопа ^{99m}Tc в конечном продукте присутствует как атомарный Tc, так и ионы пертехнетата натрия NaTcO_4 в виде $[\text{TcO}_4]^-$. Атомарный технеций не участвует в процессах метаболизма живого организма. Главным компонентом радиофармпрепарата на основе пертехнетата натрия являются ионы $[\text{TcO}_4]^-$. В фармакопейной статье (нормативно-технический документ, устанавливающий требования к качеству лекарственного препарата) по пертехнетату натрия имеется требование к процентному содержанию атомарного Tc – не более 5% от общего количества радиоактивных атомов.

Поскольку и атомарный Tc, и ионный $[\text{TcO}_4]^-$ являются одинаково радиоактивными, возможно измерение пропорции активностей $\text{Tc}/[\text{TcO}_4]^-$ методом тонкослойной (бумажной) хроматографии. Для этого на один конец тонкой полоски хроматографической бумаги наносят микрокаплю пертехнетата натрия и затем проявляют ее элюатом – метиловым спиртом. Ионная компонента продвигается к противоположному краю хроматографической полоски, а атомарная остается на месте. После этого измерение активности вдоль полоски бумаги дает информацию о соотношении $\text{Tc}/[\text{TcO}_4]^-$.

Устройство сканера и принцип его работы

Для измерения радиологической чистоты медицинских изотопов в ННЛА был разработан гамма-сканер для измерения радиологической чистоты медицинских изотопов.

Блок-схема этого гамма-сканера изображена на Рис. 51. Гамма-сканер состоит из блока управления, в который входят электронные платы для счета импульсов (5) и для управления шаговым двигателем (7), блока высоковольтного питания, дискриминатора (4), усилителя входного сигнала (3), механизма с шаговым двигателем (8) и сцинтилляционного счетчика (2).

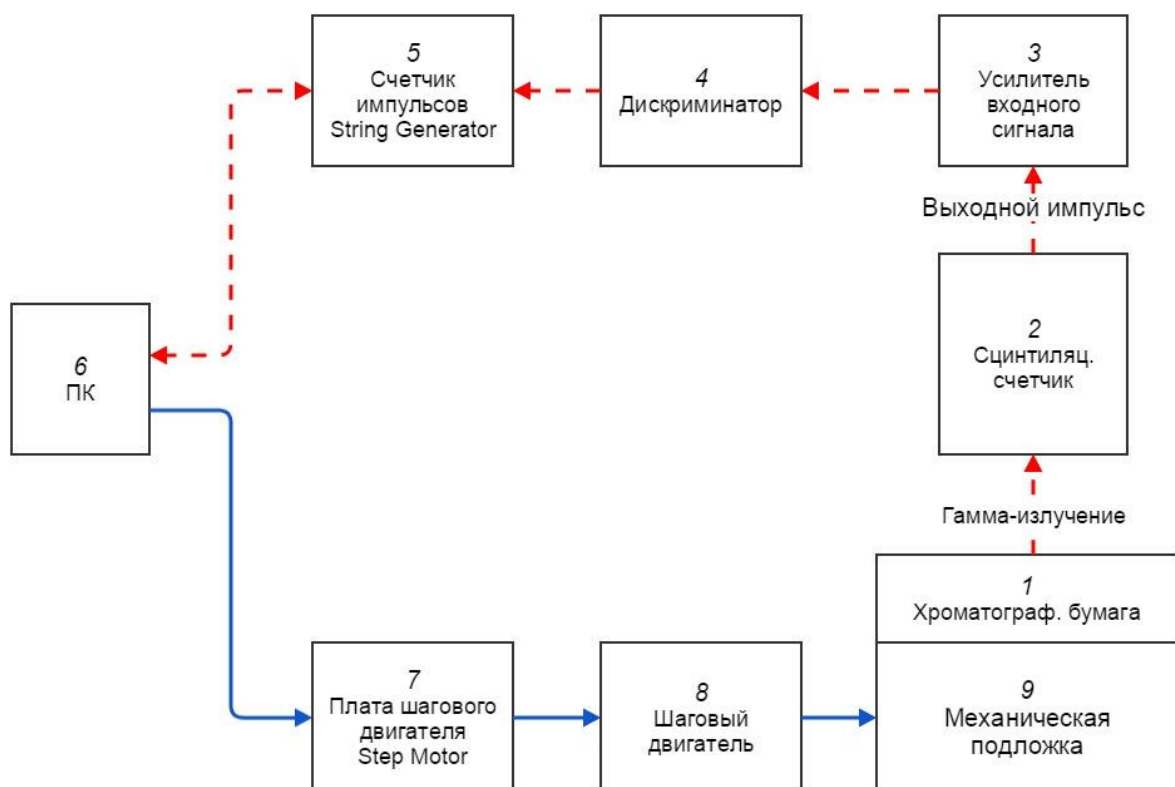


Рис. 51 Блок-схема гамма-сканера.

Для осуществления сканирования обработанная хроматографическая бумага (1) ставится на механическую подложку (9). Сцинтилляционный счетчик (2) регистрирует гамма-излучение с данной позиции хроматографической бумаги. Выходной импульс проходит через усилитель (3). Дискриминатор (4) преобразует аналоговые импульсы с детектора в цифровой импульс, который подается на счетчик импульсов (5). Данные отправляются на персональный компьютер (6) через интерфейс RS232. Программное обеспечение суммирует

количество импульсов со счетчика в заданном промежутке времени. По окончании заданного промежутка времени счет импульсов на данной позиции хроматографической бумаги заканчивается. ПК отправляет сигнал на плату шагового двигателя (7). Шаговый двигатель перемещает подложку с хроматографической бумагой на следующую позицию. Цикл счета повторяется до последней позиции хроматографической бумаги.

После измерения строится график распределения активности вдоль хроматографической бумаги и измеряется соотношение $Tc/[TcO_4]$.

Общий вид гамма-сканера представлен на Рис. 52.

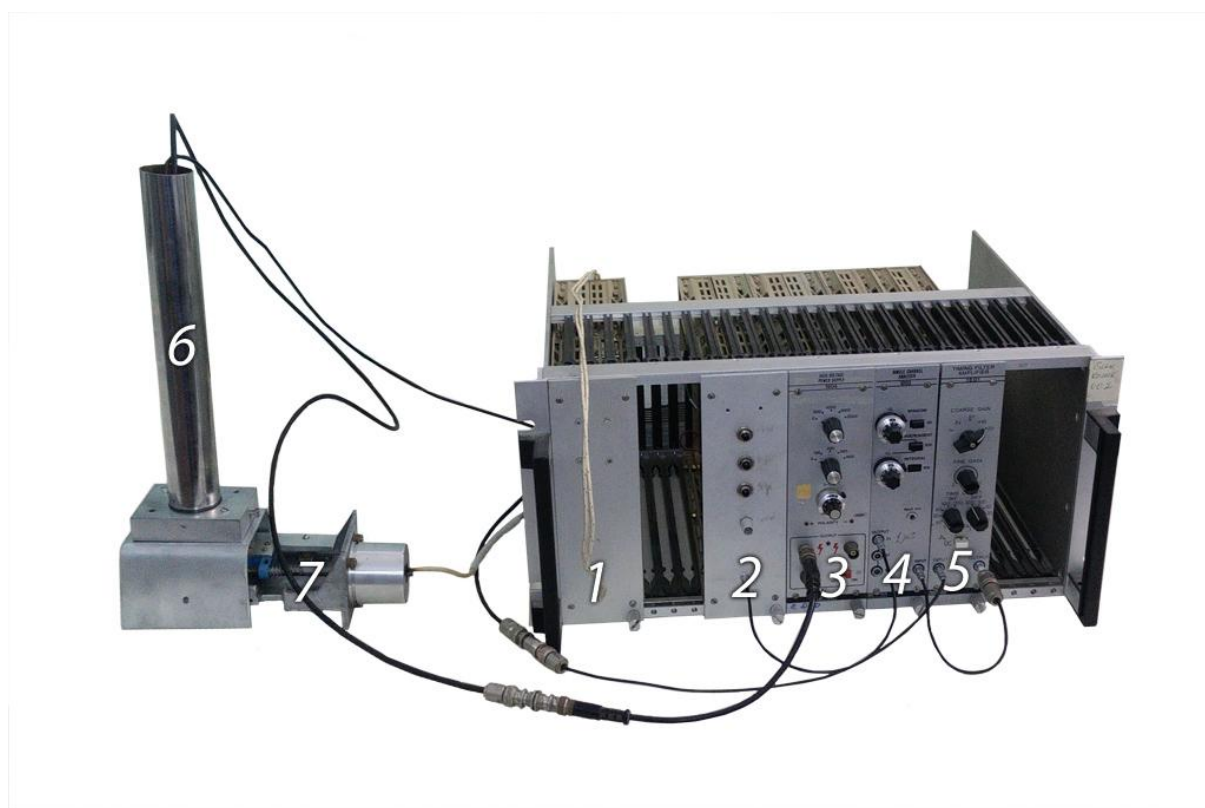


Рис. 52 Общий вид гамма-сканера: 1 – источник питания, 2 – блок управления, 3 – источник высоковольтного питания, 4 – дискриминатор, 5 – усилитель, 6 – сцинтилляционный счетчик, 7 – шаговый двигатель с подложкой для хроматографической бумаги.

Сцинтилляционный счетчик состоит из коллиматора с диаметром отверстия 5 мм, сцинтилляционного кристалла NaI(Tl) с диаметром 22 мм и высотой 35 мм, и фотоэлектронного умножителя ФЭУ-87.

Блок управления состоит из двух модулей: электронная плата StringGenerator, которая осуществляет обработку и счет входных импульсов с сцинтилляционного счетчика, и электронная плата StepMotor, которая осуществляет управление шаговым двигателем. Сцинтилляционный счетчик подключен к источнику высоковольтного питания, а выходной импульс с него усиливается с помощью усилителя, проходит через дискриминатор и подается с него на плату StringGenerator.

Коммуникация с компьютером осуществляется с помощью порта RS232. На платах StringGenerator и StepMotor установлены микроконтроллеры серии PIC, запрограммированные на ассемблере. Программное обеспечение для персонального компьютера написано в среде VisualBasic 6.

Программное обеспечение позволяет устанавливать следующие параметры сканирования: длину шага, время сканирования каждого шага, количество шагов. После сканирования данные сохраняются в формате DAT-файлов и обрабатываются в Microsoft Office Excel.

Измерение радиохимической чистоты пертехнетата натрия

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

Осуществлено исследование чистоты пертехнетата натрия со следующими параметрами сканирования: шаг сканирования 3мм, время

сканирования каждого шага 300 с, количество шагов 13. Результаты сканирования приведены на Рис. 53.

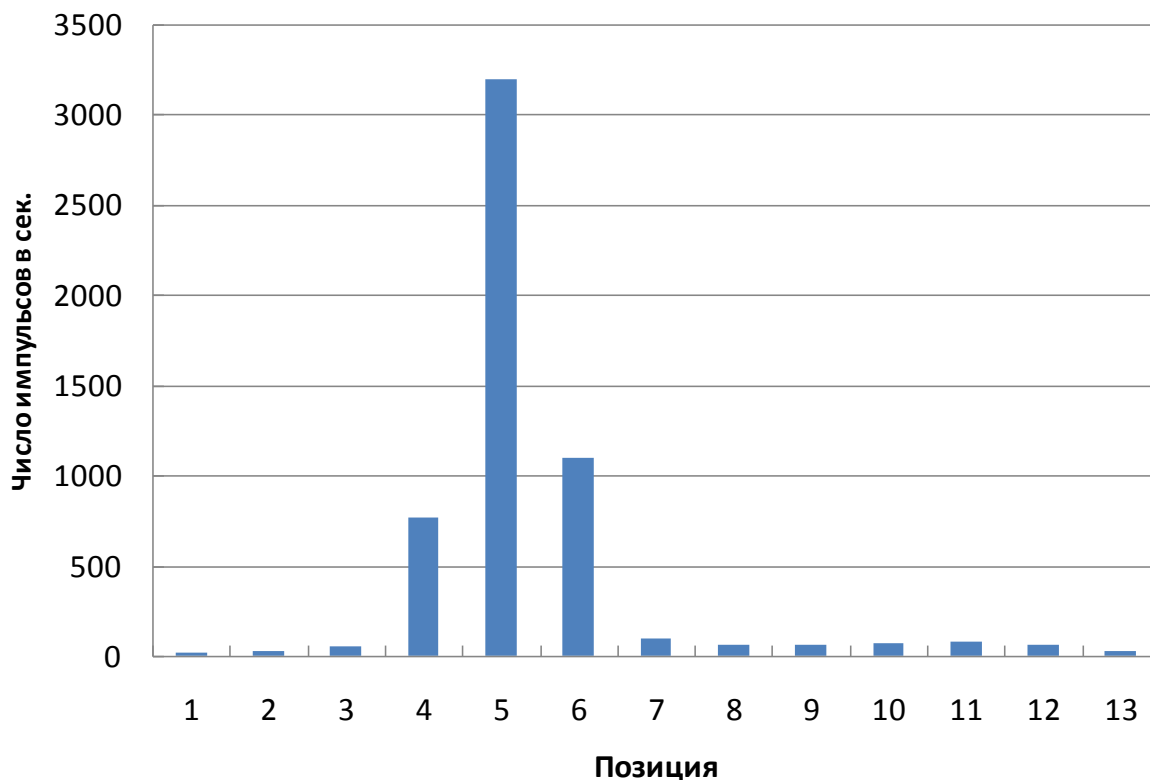


Рис. 53 Результаты сканирования пертехнетата натрия.

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 при логарифмическом масштабе.

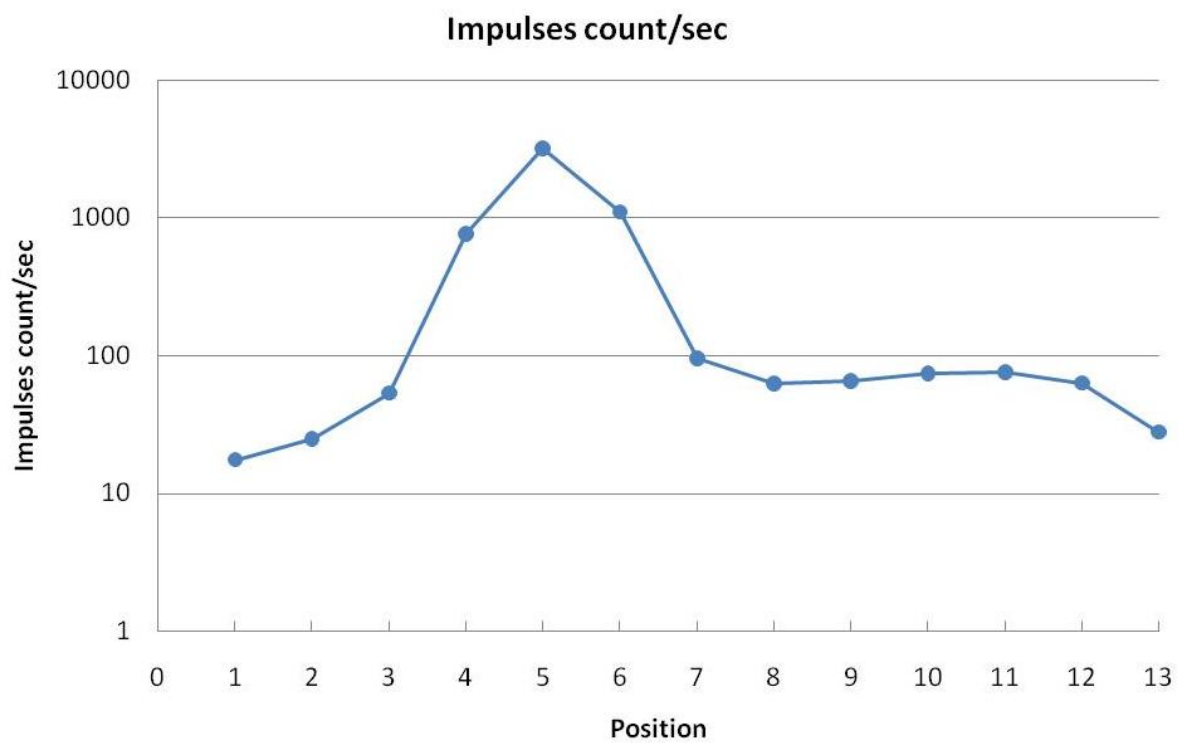


Рис. 54 Результаты сканирования пертехнетата натрия в логарифмической шкале.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе выполнения диссертации были проведены следующие работы:

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 впервые проведены расчет и моделирование тепловой нагрузки на мишени 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 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 Mo.

7. Разработаны и созданы системы контроля радиоизотопной и радиохимической чистоты полученного пертехнетата.

Ценность проведенных работ обусловлена тем, что разработанные системы опробованы и могут быть успешно применены для производства медицинского изотопа ^{99m}Tc на циклотроне C18.

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

ПРИЛОЖЕНИЯ

Приложение 1. Назначение изотопов, получаемых в реакторах и на циклотронах.

Табл. 11 Изотопы, получаемые в реакторах.

Изотоп	Время полураспада	Назначение
^{213}Bi	46 минут	Используется для целевой альфа терапии (ЦАТ), особенно рака, так как альфа-частицы имеют высокую энергию (8,4 МэВ)
^{137}Cs	30 лет	Используется для низкоинтенсивной стерилизации крови
^{51}Cr	28 дней	Используется для маркировки красных кровяных телец при мониторинговании и измерении потерь гастро-кишечного протеина или кровотечений
^{60}Co	5.27 лет	Ранее использовалось для внешней пучковой радиационной терапии, теперь почти повсеместно используется для стерилизации
^{165}Dy	2 часа	Используется как агрегированный гидроксид для синовэктомического лечения артритов
^{169}Er	9.4 дней	Используется для смягчения болей в синовиальных сочленениях/суставах
^{166}Ho	26 часа	Разработаны методики для использования в диагнозе и лечении рака печени
^{125}I	60 дней	Используется в раковой брахитерапии (простата и мозг), а также в диагностических целях для оценки скорости фильтрации почек и для диагностики глубокого тромбоза вен на ногах. Также широко используется для радиоиммунологических исследований в целях поиска малых количеств гормонов
^{131}I	8 дней	Широко используется в лечении рака щитовидной железы и визуализации щитовидной железы. Используется также для

		диагностики аномального функционирования печени, почечного кровообращения и обструкций мочевоплового тракта. Является сильным генератором гамма излучения, используется также для терапии бета излучением
^{192}Ir	74 дней	В форме струн используется как внутренний радиотерапевтический источник для лечения раковых заболеваний (используется, а затем удаляется). Является генератором бета излучения
^{59}Fe	46 дней	Используется для изучения метаболизма железа в селезенке
^{212}Pb	10.6 часов	Используется для целевой альфа терапии (ЦАТ) рака, а также в радиоиммунотерапии, с продуктами распада ^{212}Bi и ^{212}Po , поставляющими альфа частицами. Особенно часто используется для лечения рака меланомы, груди и яичников. Потребность в изотопе возрастает
^{177}Lu	6.7 дней	Увеличивается число использований в виде источника исключительно гамма излучения для визуализации, в качестве источника бета излучения используется для лечения малых раковых образований эндокринных желез. Достаточно большая длительность периода полураспада дает возможность приготовления сложно устроенных препаратов. Обычно производится с помощью нейтронной активации мишеней из натурального или обогащенного ^{176}Lu
^{99}Mo	66 часов	Используется как "родительский" генератор для производства ^{99m}Tc
^{103}Pa	17 дней	Используется для брахитерапии (контактной лучевой терапии) с помощью имплантации микроисточников постоянного действия на ранних стадиях рака простаты
^{32}P	14 дней	Используется для лечения болезни Вака-

		Ослера (избыток красных кровяных телец). Используется как генератор бета излучения
^{42}K	12 часов	Используется для определения взаимозаменяемости калия в коронарных кровенных потоках
^{186}Rh	3.8 дней	Используется как болеутоляющее средство при раке кости. Хороший источник бета излучения с небольшим фоном гамма излучения, используется для визуализации
^{188}Rh	17 часов	Используется для облучения коронарных артерий бета излучением при стеновой ангиопластике
^{153}Sm	47 часов	Является очень эффективным обезболивающим средством вторичных раковых образований в кости (в продаже препарат называется Quadramet). Эффективное средство для раковых заболеваний простаты и груди. Хороший генератор бета излучения
^{75}Se	120 дней	Используется в форме селено-метионина для изучения образования пищеварительных ферментов
^{24}Na	15 часов	Используется для изучения электролитов внутри человеческого тела
^{89}Sr	50 дней	Очень эффективное болеутоляющее средство при раке простаты и костей. Хороший источник бета излучения
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6 часов	В частности используется для визуализации скелета и мускулов сердца, а также мозга, щитовидной железы, легких (кровоснабжение и вентиляция), печени, селезенки, почек (структура и скорость фильтрации), желчного пузыря, костного мозга, слезных и слюнных желез, кровообращения сердца, воспалительных процессов и множества других специализированных исследований. Производится в генераторах на базе ^{99}Mo .

		Наиболее широко используемый радиоизотоп
^{133}Xe	5 дней	Используется для изучения процессов вентиляции легких
^{169}Yb	32 дней	Используется для изучения цереброспинальной жидкости в мозге
^{177}Yb	1.9 часов	Источник изотопа ^{177}Lu
^{90}Y	64 часов	Используется для брахитерапии рака а также как силикато-коллоидный обезболивающий раствор при артритах больших синовиальных суставов. Возрастает значимость изотопа при лечении рака печени

Табл. 12 Изотопы, получаемые на циклотронах.

Изотоп	Время полураспада	Назначение
^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F		Являются излучателями позитронов, которые используются в ПЭТ. Используются в исследованиях мозговой физиологии и патологии, психиатрии, и нейрофармакалогических исследованиях. Также имеют важную роль в кардиологии. ^{18}F в FDG (fluorodeoxyglucose). В последнее время стал важным изотопом при обнаружении рака и наблюдении прогресса в его лечении
^{57}Co	272 дней	Используются как маркеры для оценки размеров органов и для in-vitro диагностических наборов
^{64}Cu	13 часов	Используется для изучения генетических болезней, таких как болезнь Вильсона и Менка, которые действуют на метаболизм меди, также для визуализации опухолей в ПЭТ и терапии
^{67}Cu	2.6 дней	Бета-излучатель, используется в терапии
^{67}Ga	78 часов	Используется для визуализации опухолей и для обнаружения воспалительных поражений (инфекций)
^{68}Ga	68 минут	Является излучателем позитронов. Используется в ПЭТ и ПЭТ-КТ. Получается из ^{68}Ge
^{68}Ge	271 дней	Используется как генератор для производства ^{68}Ga
^{111}In	2.8 дней	Используется в диагностических исследованиях мозга, инфекций, толстой кишки. Также используется для обнаружения сгустков крови, воспалений и редких раковых заболеваний
^{123}I	13 часов	Используется для диагностики щитовидной железы. Является гамма излучателем

^{124}I		Изотопный индикатор
$^{81\text{m}}\text{Kr}$	13 секунд	Получается из ^{81}Rb (время полураспада 4.6 часа). Используется для получения изображений легочной вентиляции. Может быть использован, например, для диагностики астматических больных и ранних болезней легких
^{82}Rb	1.26 минут	Удобный ПЭТ носитель для визуализации перфузии миокарда
^{82}Sr	25 дней	Используется как генератор для производства ^{82}Rb
^{201}Tl	73 часов	Используется для диагностики болезни коронарной артерии и для обнаружения низкосортных лимфов. Является самым часто используемым заменителем изотопа $^{99\text{m}}\text{Tc}$ в кардио-стрессовых тестах

Приложение 2. Наиболее часто применяемые в ядерной медицине реакторные радионуклиды.

Табл. 13. Реакторные радионуклиды, наиболее часто применяемые в ядерной медицине

Радионуклид	Время полураспада	Энергия распада, E-beta-max, МэВ	Энергия распада, E-gamma, МэВ	Применение
^{99}Mo	67 часа	0.87	0.74	Изготовление РФП на основе $^{99\text{m}}\text{Tc}$ для диагностики
^{131}I	8.02 дней	0.61	0.28/0.36/0.64	Диагностика и лечение функциональных нарушений и рака щитовидной железы
^{32}P	14.3 дней	1.71	-	Диагностика, терапия, маркировка нуклеотидов
^{51}Cr	27.8 дней	-	0.323	Маркировка эритроцитов для

				биологических исследований
^{153}Sm	1.95 дней	0.81	0.07/0.103	Лечение боли в костях при метастазах
^{166}Ho	1.1 дней	1.6	0.08	Лечение ревматоидного артрита
^{125}I	60.2 дней	-	0.028/0.035	РИА, брахитерапия онкологических заболеваний

ЛИТЕРАТУРА

1. Radioisotopes in Medicine. [Online].; 2016. Available from: <http://www.world-nuclear.org/information-library/non-power-nuclear-applications/radioisotopes-research/radioisotopes-in-medicine.aspx>.
2. ORCD/NEA. A Supply and Demand Update. [Online].; 2012. Available from: <http://www.oecd-neo.org/med-radio/docs/2012-supply-demand.pdf>.
3. H.L.Owen, J.Ballinger, J.Buscombe, R.Clarke, E.Denton, B.Ellis, T.G.Flux, L.Fraser, B.Neilly, A.Paterson, A.C.Perkins, A.Scarsbrook. OPTIONS FOR UK TECHNETIUM-99M PRODUCTION USING ACCELERATORS. In Proceedings of IPAC2014; 2014; Dresden, Germany. p. 2815-2818.
4. В.Н.Забаев. Применение ускорителей в науке и промышленности: Учебное пособие Томск: Изд-во ТПУ; 2008.
5. А.А.Веревкин, Н.Г.Стервиедов, Г.П.Ковтун. Получение и применение короткоживущих и ультракороткоживущих изотопов в медицине. Вестник Харьковского университета. 2006; 746: p. 54-64.
6. В.С.Скуридин. Методы и технологии получения радиофармпрепаратов Томск: ТПУ; 2013.
7. А.Е.Avetisyan. Accelerator based technologies of isotopes production in armenia – current status and future plans. Legnaro, Italy;; 2013.
8. А.Н.Dovbnya, N.P.Dikiy, V.I.Nikiforov, V.L.Uvarov. Conception of medical isotope production at electron accelerator. In Proceedings of EPAC; 2006; Edinburgh, Scotland.

9. R.S.Orr. Medical Isotope Production by Electron Accelerators. [Online].: University of Toronto. Available from:
http://hep.physics.utoronto.ca/~william/courses/phy189/Orr_isotopes.pdf.
10. Y. Danon, R.C. Block, R. Testa, H. Moore. Medical isotope production using a 60 MeV linear electron accelerator. TRANSACTIONS-AMERICAN NUCLEAR SOCIETY. 2008;(98): p. 894.
11. G.G.Bunatian, V.G.Nikolenko, A.B.Popov. On the usage of electron beam as a tool to produce radioactive isotopes in photo-nuclear reactions. Dubna, RF;; 2009.
12. R.K.Dallakyan. Photonuclear production of ^{111}In on the linear electron accelerator. Armenian Journal of Physics. 2013; 6(1): p. 45-50.
13. A.Avetisyan, R. Avagyan, I. Kerobyan, R. Dallakyan, G. Harutyunyan, A. Melkonyan. Development of medicine-intended isotope production technologies at Yerevan Physics Institute. In EPJ Web of Conferences; 2015.
14. Terry L. Grimm, Jerry L. Hollister, Stephen A. Klass. Isotope Production Using a Superconducting Electron Linac. In DOE-NP SBIR/STTR Exchange Meeting; 2014; Gaithersburg MD.
15. World Nuclear News. [Online].; 2015. Available from: <http://www.world-nuclear-news.org/RS-New-record-for-cyclotron-isotope-production-0901158.html>.
16. S.Korenev. Accelerator Systems for the Production of Medical Isotopes. In ; 2014; Dubna, Russia: 22nd Baldin International Seminar On High Energy Physics.

17. Data.gov. [Online].; 2015. Available from:
<http://catalog.data.gov/dataset/isotope-production-facility-ipf>.
18. CERN Document Server. [Online].; 2013. Available from:
<http://cds.cern.ch/record/1998282>.
19. R. Avagyan, A. Avetisyan, I. Kerobyan, R. Dallakyan. Photo-production of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ with electron linear accelerator beam. Nuclear Medicine and Biology. 2014; 41: p. 705–709.
20. G.Audi, O.Bersillon, J.Blachot. The NUBASE evaluation of nuclear and decay properties. 2003; 729: p. 3-128.
21. P.Richards. The technetium-99m generator. Upton, New York.; 1965. Report No.: BNL 9601.
22. W.D.Tucker, et.al. Die produktion von traegefreiem tellur-132, jod-132, molybdaen-99 und technetium-99m aus neu-tronenbestrahltem uran durch fraktionierte sorption an aluminiumoxyd. 1962; 8: p. 163-167.
23. G.J.Beyer, E.Hermann, F.Molnar. : Radioch. & Radioanal. Letters; 1972.
24. A.M.Poskanzer, B.M.Foreman. 1961; 16: p. 323.
25. A.C.Каралов. Радиохимия,; 1977.
26. С.Н.Дмитриев, Н.Г.Зайцева. Радионуклиды для биомедицинских исследований. Ядерные данные и методы получения на ускорителях заряженных частиц. 1996; 27(4).
27. M.C.Lagunas-Solar, N.X.Zeng, I.Mirshad, C.M.Castaneda. Cyclotron Production of Molybdenum-99 via Proton-Induced Uranium-238 Fission.

1996; 74: p. 134.

28. М.Г.Давыдов, С.А.Марескин. О возможности получения ^{99}Mo и $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на ускорителях электронов. 1993; 5: p. 91.
29. N.P.Dikiy, A.N.Dovbnya, V.L.Uvarof. ; 1998; Stockholm: EPAC-98, 6th European Particle Accelerator Conference.
30. R.H.Avagyan, A.E.Avetisyan. Experimental investigation of the possibility of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ isotope production for medical application on the base of Linear Electron Accelerator LUE50 of Yerevan Physics Institute. In ; 2009; Almaty, Kazakhstan: 7th International Conference Nuclear and Radiation Physics.
31. Р.О.Авакян, А.Э.Аветисян, И.А.Керобян, С.П.Тароян. Прикладная ядерная физика в Ереванском Физическом Институте. 2009; 44: p. 380.
32. R. Avakian, A. Avetisyan, R. Dallakyan, I. Kerobyan. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ Photo-Production Under Electronlinear Accelerator Beam. 2013; 6(1): p. 35-44.
33. Р.К.Даллакян. Исследование Фотоядерных Реакций На Пучке Линейного Электронного Ускорителя ЕрФИ с Энергией 40 МэВ. Ереван.; 2013.
34. R.H.Avagyan, A.E.Avetisyan, I.A.Kerobyan, et.all. Experimental Plant for Investigation of the Possibility of Linac-Based Production of Medicine-Intended Isotopes. 2012; 47(1): p. 9-16.
35. H.Targholizadeh, G.Raisali, AR.Jalilian, et.all. Cyclotron production of technetium radionuclides using a natural metallic molybdenum thick target and consequent preparation of $[\text{Tc}]$ -BRIDA as a radio-labelled kit sample. 2010; 55(1): p. 113-118.
36. K.Nakai, N.Takahashi, et.all. Feasibility studies towards future self-sufficient

- supply of the ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ isotopes with Japanese accelerators. Proc Jpn Acad Ser B Phys Biol Sci. 2014; 90(10): p. 413-421.
37. Nirta Solid Compact Model TS06 Operating Manual. [Online]. Belgrade, Serbia: ELEX COMMERCE; 2010.
38. A.H.Rayyes. Accelerator-based Alternatives to Non-HEU Production of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$. Legnaro, Italy; 2013.
39. Арутюнян, Г.С. Теоретическое Обоснование Возможности Криогенного Охлаждения Твердотельной Мишени При Облучении Пучком Протонов Циклотрона C18. Известия НАН Армении, Физика. 2016; 51(2): p. 139-146.
40. R.H.Gallagher. Finite element analysis fundamentals Englewood Cliffs, New Jersey: Prentice Hall; 1975.
41. И.С.Григорьев, Е.З.Мелихов. Физические величины. Справочник. Москва: Энергоатомиздат; 1991.
42. Q.Liu, K.Fukuda. Transient Heat Transfer for Forced Convection Flow of Helium Gas. JSME Inter. J. Series B Fluids and Thermal Engineering. 2002; 45: p. 559.
43. A. Avetisyan, R. Dallakyan, R. Sargsyan, A. Melkonyan, M. Mkrtchyan, G. Harutyunyan, N. Dobrovolsky. The powdered molybdenum target preparation technology for $^{99\text{m}}\text{Tc}$ production on C18 cyclotron. Inter. J. Engin. Science and Innovative Technology. 2015; 4(3): p. 37.
44. S.G.Arutunian. Vibrating wire scanner for beam profile monitoring. In Proc. 1999 Part. Acc. Conf.; 1991; New York. p. 2105-2107.
45. S.G.Arutunian, N.M.Dobrovolski, M.R.Mailian, I.G.Sinenko, I.E.Vasiniuk.

- Vibrating wire for beam profile scanning. Phys. Rev. Special Topics - Accelerators and Beams. 1999; 2.
46. S.G.Arutunian, M.Werner, K.Wittenburg. Beam tail measurements by wire scanners at DESY. In ICFA Advanced Beam Dynamic Workshop: Beam HALO Dynamics, Diagnostics, and Collimation (HALO'03) (in conjunction with 3rd workshop on Beam-beam Interaction); 2003; NY.
 47. S.G.Arutunian, K.G.Bakshetyan, N.M.Dobrovolski, M.R.Mailian, A.E.Soghoyan, I.E.Vasiniuk. First experimental results and improvements on profile measurements with the vibrating wire scanner. In Proc. DIPAC'2003; 2003; Mainz, Germany. p. 141-143.
 48. S.G.Arutunian, N.M.Dobrovolski, M.R.Mailian, I.E.Vasiniuk. Vibrating wire scanner: first experimental results on the injector beam of Yerevan synchrotron. Phys. Rev. Special Topics, Accelerators and Beams. 2003; 6.
 49. S.G.Arutunian, K.G.Bakshetyan, N.M.Dobrovolsky, M.R.Mailian, L.A.Poghosyan, I.G.Sinenko, H.E.Soghoyan, I.E.Vasiniuk, K.Wittenburg. PETRA proton beam profiling by vibrating wire scanner. DIPAC 2005. 2005;: p. 181-183.
 50. S.G.Arutunian, M.R.Mailian, K.Wittenburg. Vibrating wires for beam diagnostics. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 2007; 572: p. 1022–1032.
 51. G.Decker, S.Arutunian, M.Mailian, I.Vasiniuk. Hard X-ray synchrotron measurements at the APS with vibrating wire monitor. In Beam Instrumentation Workshop, BIW08; 2008; Lake Tahoe, USA. p. 36-40.
 52. S.G.Arutunian. Vibrating wire sensors for beam instrumentation. In Beam

- Instrumentation Workshop, BIW08; 2008; Lake Tahoe, USA. p. 1-7.
53. S.G.Arutunian, A.E.Avetisyan, N.M.Dobrovolski, M.R.Mailian, I.E.Vasiniuk, K.Wittenburg, R.Reetz. Problems of Installation of Vibrating Wire Scanners into Accelerator Vacuum Chamber. In Proceedings of the 8th European Particle Accelerator Conference; 2002; Paris. p. 1837–1839.
54. 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: p. 032802.
55. J.Alonso, S.G.Arutunian. Complex beam profile reconstruction, a novel rotating array of vibrating wires. In Proceedings of IPAC2014; 2014; Dresden, Germany. p. 3415-3417.
56. 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: p. 023108.
57. 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: p. 37-43.
58. 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.
59. J.H.Hubbell, S.M.Seltzer. National Institute of Standards and Technology. [Online]. Gaithersburg, MD (United States); 1995. Available from: <http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/>.

60. A.E.Avetisyan, S.G.Arutunian, I.E.Vasiniuk, M.M.Davtyan. Yerevan synchrotron injector electron beam transversal scan with vibrating wire scanner. Journal of Contemporary Physics (Armenian Academy of Sciences). 2011; 46(6): p. 247-253.
61. M.A.Aginian, S.G.Arutunian, D.Choe, M.Chung, G.S.Harutyunyan, K.R.Kim, S.Y.Kim, S.J.Kim, E.G.Lazareva, A.V.Margaryan. Korea Multi-purpose Accelerator Complex 20 MeV proton beam profile measurements by vibrating wire monitor. submitted to Phys. Rev. Special Topics - Accelerators and beams. .
62. K.R.Kim, K.Y.Kim, Y.S.Cho, J.Y.Kim, J.W.Park, B.H.Choi. The Proton Engineering Frontier Project: Beam Utilization and User Program. Journal of the Korean Physical Society. 2011; 59(2): p. 521-527.
63. Y.S.Cho, H.J.Kwon, D.I.Kim, H.S.Kim, J.Y.Ryu, B.S.Park, K.T.Seol, Y.G.Song, S.P.Yun, J.H.Jang. THE KOMAC ACCELERATOR FACILITY. In Proceedings of IPAC2013; 2013; Shanghai, China. p. 2052-2054.
64. T.E.Mason. Neutron Sources for Materials Research. [Online]. Oak Ridge, USA: Experimental Facilities Division, Spallation Neutron Source. Available from: http://fire.pppl.gov/neutron_sources_aug_00.ppt.
65. Y.Nagai. Medical Isotope Production using High Intensity Accelerator Neutrons. Physics Procedia. 2015; 66: p. 370 – 375.
66. Н.А.Нерозин. Радиохимические технологии в ГНЦ РФ. In Радиохимия и радиохимическая технология: прошлое, настоящее, будущее; 2012; Москва.
67. R.C.Lawson, J.M.A.Lenihan. Neutrons in medicine. Physics in Technology.

1982; 13: p. 233.

68. W.A.G.Sauerwein, A.Wittig, R.Moss, Y.Nakagawa. Neutron Capture Therapy: Principles and Applications Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag; 2012.
69. Y.Mishima. Cancer neutron capture therapy: Springer Science & Business Media; 2013.
70. R.F.Barth, D.E.Carpenter, A.H.Soloway. Advances in Neutron Capture Therapy: Springer Science & Business Media; 2013.
71. N.S.Hosmane, J.A.Maguire, Y.Zhu, M.Takagaki. Boron and Gadolinium Neutron Capture Therapy for Cancer Treatment: World Scientific Publishing Company; 2012.
72. A.N.Dovbnya, E.L.Kuplennikov, S.S.Kandybey, V.V.Krasilnikov. Neutrons against cancer. Physics of Elementary Particles and Atomic Nuclei. 2014; 45(5): p. 972-990.
73. L.V.Tarasov. Low-Energy Neutron Physics: North-Holland Pub. Co.; 1968.
74. Y.Sakurai, T.Fujii, R.Uchida, H.Tanaka. Establishment of QA/QC for BNCT Neutron Irradiation Field. Osaka, Japan; 2012.
75. T.E.Mason. Neutron Detectors for Materials Research. [Online]. Available from: http://fire.pppl.gov/neutron_detectors_aug_00.ppt.
76. A.A.Poljakov, Ju.V. Stogov, L.N. Jurova. Computational experimental studies of resonant absorption of neutrons in the fuel element of the water-moderated water-cooled power reactors containing oxide uranium-gadolinium fuel. [Online].; 1995. Available from: <http://www.library.mephi.ru/data/scientific-sessions/1999/5/219.html>.

77. NIST Physical Measurement Laboratory. [Online]. [cited 2016. Available from: <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ElemTab/z74.html>].
78. M.P.Zykov, V.N.Romanovskii, D.W.Wester, et.al. Use of extraction generator for preparing a ^{99m}Tc radiopharmaceutical. Radiochemistry. 2001; 43(3): p. 297–300.
79. Г.С.Арутюнян. Гамма—Сканер для контроля радиохимической чистоты медицинских изотопов. Известия НАН Армении, Физика. 2015; 50(3): p. 384–389.