

ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ, МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ

УДК 621.039.63

ЛАБОРАТОРНАЯ УСТАНОВКА ДЛЯ ПОВЫШЕНИЯ ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО ВЫХОДА ^{123}I ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПРОТОНАМИ МИШЕНИ С ^{124}Xe

© 2023 г. А. А. Артюхов^а, В. А. Загрядский^а, Я. М. Кравец^а, Т. М. Кузнецова^а,
Т. Ю. Маламут^а, В. И. Новиков^а, А. В. Рыжков^а, И. И. Скобелин^а, Т. А. Удалова^{а,*}

^аНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”
Россия, 123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1

*e-mail: udalova_ta@nrcki.ru

Поступила в редакцию 24.01.2023 г.

После доработки 17.04.2023 г.

Принята к публикации 22.04.2023 г.

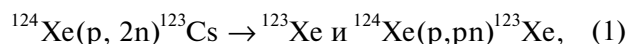
Одним из способов получения ^{123}I является облучение протонами газообразного ^{124}Xe , в среде которого происходят ядерные реакции, приводящие к образованию и распаду изотопов ^{123}Xe и ^{123}I . По окончании облучения газовую фазу конденсируют из мишенного устройства в специальную “распадную” емкость, в которой в процессе распада ^{123}Xe происходит образование и накопление целевого изотопа ^{123}I . За время облучения в мишенном устройстве образуется и оседает на его стенках количество ^{123}I , сопоставимое с получаемым в “распадной” емкости. Для повышения общего выхода ^{123}I была создана лабораторная установка и отработан технологический процесс извлечения ^{123}I со стенок мишени. Для этого использовались органические растворители — ацетон и диэтиловый эфир. При смывании со стенок мишенного устройства с алюминиевым корпусом доля извлекаемого ^{123}I составляет не менее 84%. Потери при последующей вакуумной отгонке растворителей не превышают 5%. После вакуумной отгонки выделенный ^{123}I растворяется в NaOH. На этом этапе эффективность смыва ^{123}I раствором 0.01 М NaOH составляет не менее 95%. Однако даже с учетом этих потерь предложенный способ дает возможность дополнительно извлекать из мишенного устройства радионуклид ^{123}I в количестве равном или превышающем активность нарабатываемого ^{123}I по существующей технологии.

DOI: 10.31857/S0032816223060010, EDN: XUZWTR

1. ВВЕДЕНИЕ

Радиоактивный изотоп ^{123}I широко используется для диагностики целого ряда заболеваний. В настоящее время известно несколько способов реализации производства радионуклида ^{123}I для медицины с использованием ускорителей. Извлечение ^{123}I из газовых мишеней при облучении ^{124}Xe преимущественно осуществляют водой. В зависимости от материала мишенного устройства, помимо воды, используются также слабые растворы NaOH, NaCl, NaHSO₃ с последующим концентрированием и очисткой различными радиохимическими методами [1–3].

В НИЦ “Курчатовский институт” разработан и реализован способ получения радионуклида ^{123}I [4, 5], при котором наработка радиоизотопа ^{123}I проводится облучением протонами изотопа ^{124}Xe по реакциям



После облучения газообразные ^{124}Xe и ^{123}Xe криогенным способом конденсируются в “распадный” баллон, где их выдерживают для распада ^{123}Xe и накопления ^{123}I , после чего ^{124}Xe перекомденсируются в резервуар для хранения и повторного использования. В этих работах авторами [4, 5] проанализирована эффективность разных технологий сбора ^{123}I после облучения. Наилучшей, т. е. обеспечивающей минимальные потери, признана технология, при которой выделение ^{123}I происходит и из мишени (сразу после облучения), и из “распадного” баллона (в момент, когда активность ^{123}I в нем достигает максимума).

Реализуемый в настоящее время в НИЦ “Курчатовский институт” способ не позволяет извлекать ^{123}I , образованный в мишенном устройстве

Таблица 1. Зависимость отношения активности ^{123}I , распадающегося в мишенном устройстве после шестичасового облучения, к максимуму активности ^{123}I в “распадной” емкости

Δt , ч	0	1	2	3	4	5	6	7
q , отн. ед.	1.65	1.57	1.49	1.41	1.34	1.27	1.21	1.15

за время облучения. Извлечение производится только из “распадного” баллона, что дает возможность получать радионуклид ^{123}I высокой чистоты, однако при этом значительная часть его теряется. Хотя авторами отмечается, что работа по схеме, в которой ^{123}I извлекается только из “распадного” баллона, приводит к большим потерям ^{123}I , для наработок была выбрана именно эта схема, так как ее было проще и быстрее технически реализовать. Данная схема при частых облучениях малой продолжительности позволила обеспечивать начальные потребности — получение ^{123}I в количестве примерно 1 Ки, с тем чтобы на ее основе перейти к более продуктивной схеме извлечения.

2. КИНЕТИКА НАКОПЛЕНИЯ ^{123}I

Оценим уровень неиспользуемого ^{123}I , остающегося в мишенном устройстве на момент прекращения стандартного шестичасового облучения и конденсации ^{123}Xe в “распадный” баллон.

Относительные количества изотопов ^{123}Xe и ^{123}I , образующихся и распадающихся в процессе облучения и после его окончания, описываются простыми кинетическими уравнениями, использующими лишь значения постоянных распада ^{123}Xe и ^{123}I .

2.1. ^{123}Xe и ^{123}I в мишенном устройстве

Изменение количества изотопов ^{123}Xe и ^{123}I во время облучения описывается функциями:

$$n_{\text{Xe}}(t) = \frac{V}{\lambda_{\text{Xe}}} (1 - e^{-\lambda_{\text{Xe}} t}), \quad (3)$$

$$N_{\text{I}}(t) = V \left[\frac{1}{\lambda_{\text{I}}} - \frac{1}{\lambda_{\text{I}} - \lambda_{\text{Xe}}} e^{-\lambda_{\text{Xe}} t} + \frac{\lambda_{\text{Xe}}}{\lambda_{\text{I}} \cdot (\lambda_{\text{I}} - \lambda_{\text{Xe}})} \cdot e^{-\lambda_{\text{I}} t} \right], \quad (4)$$

где $\lambda_{\text{Xe}} = 0.333 \text{ ч}^{-1}$ и $^{123}\text{I} \lambda_{\text{I}} = 0.052 \text{ ч}^{-1}$ — постоянные распада ^{123}Xe и ^{123}I , $n_{\text{Xe}}(t)$ и $N_{\text{I}}(t)$ — количества изотопов ^{123}Xe и ^{123}I в мишени в процессе облучения, $V [\text{ч}^{-1}]$ — кумулятивная скорость ядерной реакции, $t [\text{ч}]$ — время облучения.

Через шесть часов после прекращения облучения и конденсации газовой фазы в “распадную”

емкость наработанный ^{123}I остается на стенках мишенного устройства и подлежит распаду.

2.2. ^{123}Xe и ^{123}I в “распадной” емкости

При условии, что весь ^{123}Xe — потенциальный источник следующей порции ^{123}I — полностью перенесен в “распадную” емкость, изменение их количеств описываются функциями:

$$n_{\text{Xe}}(t) = n_{\text{Xe}}(6) e^{-\lambda_{\text{Xe}} t}, \quad (5)$$

$$N_{\text{I}}(t) = n_{\text{Xe}}(6) \frac{\lambda_{\text{Xe}}}{\lambda_{\text{I}} - \lambda_{\text{Xe}}} (e^{-\lambda_{\text{Xe}} t} - e^{-\lambda_{\text{I}} t}), \quad (6)$$

где $n_{\text{Xe}}(t)$ и $N_{\text{I}}(t)$ — количества изотопов ^{123}Xe и ^{123}I в “распадной” емкости в процессе распада.

На рис. 1. представлены графики процессов изменения активностей ^{123}Xe и ^{123}I в относительных единицах. В мишенном устройстве активность ^{123}I , наработанного за шесть часов, равная $A_{\text{I}}(6) = \lambda_{\text{I}} N_{\text{I}}(6)$, приведена к единице; после окончания облучения активность ^{123}I начинает понижаться за счет распада (рис. 1а). В “распадной” емкости активность йода $A_{\text{I}}(t) = \lambda_{\text{I}} N_{\text{I}}(t)$ со временем проходит через максимум $\max(A_{\text{I}})$ в диапазоне 6.2–7 ч выдержки, составляющий 0.606 отн. ед. (рис. 1б). Это время определяется только постоянными распада ^{123}Xe и ^{123}I , не зависит от параметров облучения и является наиболее выгодным для извлечения ^{123}I из “распадной” емкости. По окончании шестичасового облучения в мишенном устройстве накапливается в 1.65 раза больше ^{123}I , чем при извлечении его максимального количества из “распадной” емкости. Если сбор ^{123}I из “распадной” емкости в момент его максимальной активности уже хорошо отработан, то технологию извлечения оставшегося в мишени ^{123}I предстоит создать. В табл. 1 представлены значения отношения q активности ^{123}I в мишенном устройстве к максимуму активности в “распадной” емкости в зависимости от времени извлечения:

$$q(\Delta t) = A_{\text{I}}(\Delta t) / \max(A_{\text{I}}),$$

где Δt — время от окончания облучения до момента извлечения ^{123}I из мишенного устройства.

Приведенные в табл. 1 данные позволяют оценивать достигаемый технологический выход ^{123}I при своевременном извлечении ^{123}I из мишенного устройства. Чтобы сократить время от окончания облучения до извлечения ^{123}I из мишенного устройства, необходима разработка технологии конструктивного оформления и автоматизации этого процесса.

3. КОНСТРУКЦИЯ УСТАНОВКИ

Судя по доступной литературе, поиску альтернативных видов растворителей для извлечения остающегося в мишенном устройстве ^{123}I не уделялось существенного внимания. В работе [6] изотоп ^{123}I получался облучением протонами ксенона с обогащением 20% и 40% по изотопу ^{124}Xe . Корпусы мишенных устройств, изготовленные из кварца и сплава кобальта (Хавар), промывались последовательно растворами 0.1 М NaOH и 0.1 М HCl. Известна работа, в которой для облучения использовались высокообогащенный ^{124}Xe (99.9%), а корпус мишенного устройства был изготовлен из нержавеющей стали. Промывка мишени осуществлялась слабым раствором NaI и NaHSO_3 в воде, при этом удавалось извлечь $75 \pm 5\%$ йода [7]. На сегодняшний день широкое распространение получила установка KIPROS [8], в которой мишенное устройство изготовлено из алюминия с внутренним никелевым покрытием. Мишенное устройство промывается водой с дальнейшей концентрацией йода методом ионообменной хроматографии и последующим растворением в 0.02 М NaOH.

Разработанный нами способ основан на использовании органических растворителей, которые обеспечивают высокую растворимость йода и не взаимодействуют с материалом стенок мишенного устройства. Использование органических растворителей обеспечивает следующие преимущества:

- повышенную эффективность экстракции ^{123}I ,
- отсутствие контакта внутренней поверхности мишенного устройства с водой,
- возможность применения несложных способов очистки экстрагированного ^{123}I от радионуклидных примесей методами вакуумной разгонки.

Для экспериментов были выбраны ацетон и диэтиловый эфир, которые являются растворителями низкой токсичности (3-й класс), обладают высокой летучестью и полностью удаляются в процессе вакуумной отгонки. Применение в процедуре извлечения ^{123}I технологических операций “мокрой” химии потребовало усложнений в конструкции мишени.

На рис. 2. представлена схема созданной лабораторной установки, предназначенной для получения радионуклида ^{123}I путем облучения ^{124}Xe протонами, сбора газообразных продуктов в “распадную” емкость и извлечения ^{123}I со стенок мишенного устройства органическими растворителями. Установка состоит из двух блоков: газовакуумного (на схеме металлические трубки этого блока обозначены жирными линиями) и экстракционного (полимерные трубки экстракционного блока обозначены тонкими линиями). Оба блока соединены с мишенным устройством. 3D-модель

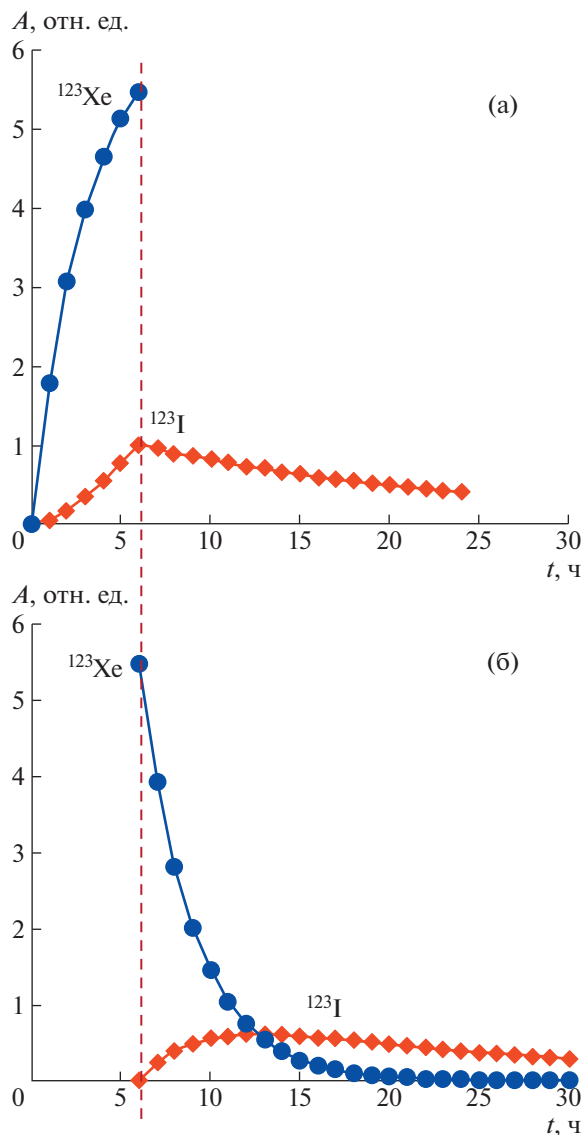


Рис. 1. Относительные активности A ^{123}Xe и ^{123}I , нормированные на активность ^{123}I , нарабатанную в мишени за шестичасовое облучение: а – в мишенном устройстве, б – в “распадной” емкости.

и фото мишенного устройства представлены на рис. 3.

Корпус мишенного устройства выполнен из алюминия марки АД1. Рабочая камера цилиндрической формы диаметром 15 мм и длиной 50 мм. Объем камеры 8.8 см^3 . Входная мембрана из алюминия толщиной 200 мкм уплотняется прокладками из витона.

4. ПРИБОРЫ И РЕАКТИВЫ

Измерения активности образцов на последовательных технологических стадиях обработки

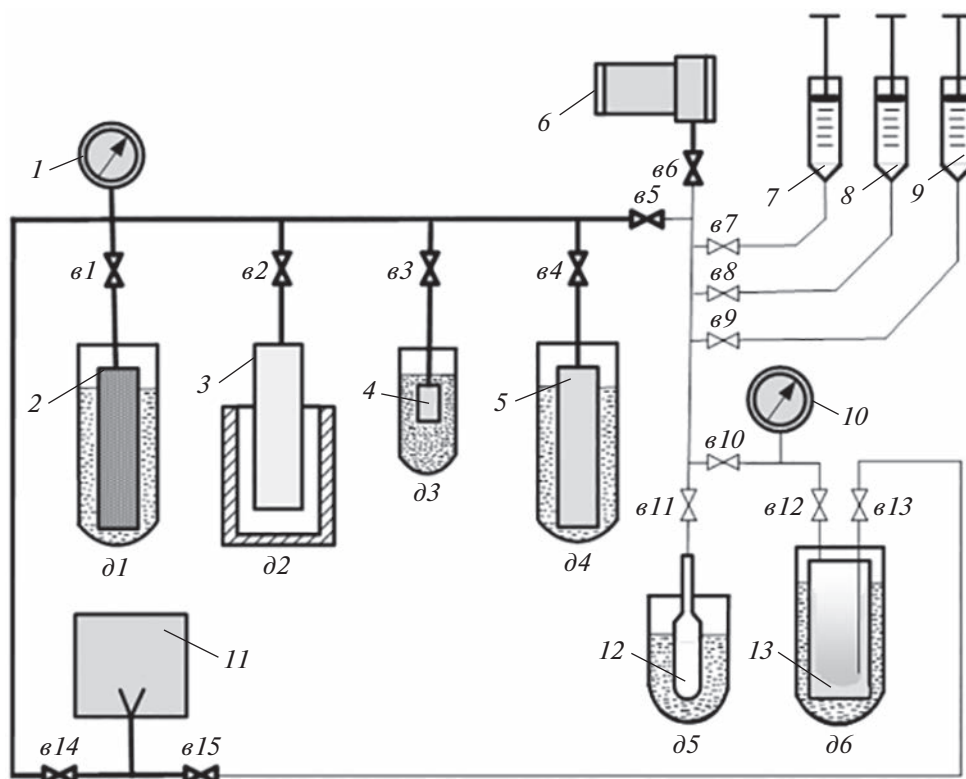


Рис. 2. Схема лабораторной установки: 1, 10 – датчики давления АИР-20-М2-ДА, 2 – сорбционная ловушка с активированным углем, 3 – емкость с исходным ^{124}Xe , 4 – мерная ловушка (вспомогательная) для ^{124}Xe , 5 – ловушка для сбора облученного ^{124}Xe и ^{123}Xe , 6 – мишенное устройство, 7 – шприц-дозатор с ацетоном, 8 – шприц-дозатор с диэтиловым эфиром, 9 – шприц-дозатор с 0.01 М NaOH, 11 – форвакуумный насос, 12 – кварцевая колба для сбора смывов, 13 – прокачная ловушка, д1–д6 – сосуды Дьюара, в1–в15 – вентили.

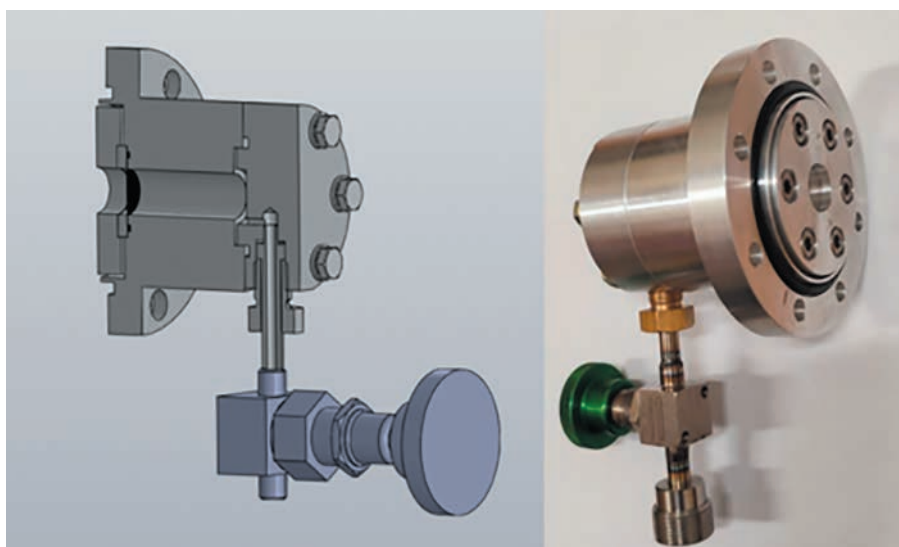


Рис. 3. Конструкция мишенного устройства 6.

проводились по линии ^{123}I $E_\gamma = 159$ кэВ с помощью γ -спектрометра фирмы ORTEC GEM 35P4 (США) с Ge-детектором. Весовой баланс при проведении операций контролировался гравиметрически с помощью аналитических весов Mettler PM6100, давление газов — датчиками АИР-20-М2-ДА. В работе использовались ацетон (ОСЧ), диэтиловый эфир (ЧДА), гидроксид натрия (ОСЧ) и деионизированная вода. После отработки основных технологических операций переходили к работам с изотопно-обогащенным ^{124}Xe (99.9%, АО “ПО ЭХЗ”) и радионуклидом ^{123}I , нарабатываемом на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт”.

5. ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ ОПЕРАЦИИ

5.1. Заполнение мишенного устройства ксеноном-124

Подготовка и заполнение мишенного устройства проводились следующим образом (рис. 2). Перед напуском ^{124}Xe в рабочую камеру коммуникации мерная ловушка 4 и мишенное устройство 6 вакуумировались с помощью сорбционной ловушки 2 до остаточного давления 1 Па. Для напуска необходимого давления ^{124}Xe в мишенное устройство ксеноном из емкости 3 конденсировался в мерную ловушку 4 объемом 1 см³. Затем мерная ловушка медленно отогревалась и в мишенное устройство напускался ^{124}Xe до давления 300 кПа. Остатки ^{124}Xe конденсировались обратно в емкость 3.

5.2. Облучение на циклотроне

Мишенное устройство с вентилем *в6* отсоединялось от стенда и передавалось для облучения на циклотрон У-150. Стандартное облучение для отработки технологии извлечения ^{123}I из мишени с помощью органических растворителей проводилось протонами с энергией 30 МэВ при токе 1 мкА в течение 10 мин. После облучения мишенное устройство выдерживалось в течение суток, затем его подсоединяли к стенду, предварительно измерив активность ^{123}I гамма-спектрометром.

5.3. Отгонка облученного ^{124}Xe

Стенд вакуумировался и ^{124}Xe конденсировался из мишенного устройства в приемную ловушку 5 до остаточного давления 1 Па. Далее мишенное устройство с вентилем *в6* отсоединялось от стенда и проводились измерения оставшейся в нем активности ^{123}I .

5.4. Заполнение мишенного устройства растворителем и слив элюата

Мишенное устройство подсоединялось к стенду для проведения экстракции ^{123}I . Для этого с помощью форвакуумного насоса 11 проводилось вакуумирование коммуникации, ограниченной вентилями *в5–в11*, и кварцевой колбы 12. После этого перекрывались вентиль *в11* на кварцевой колбе и вентиль *в10*. Затем открывался вентиль *в6* на мишенном устройстве и с помощью вентиля *в7*, *в8* заполнялось мишенное устройство ацетоном, диэтиловым эфиром или их смесью из шприцов-дозаторов 7, 8. После заполнения мишенного устройства растворителем перекрывались вентили *в6*, *в7*, *в8* и проводилось вакуумирование коммуникаций, при этом остатки растворителей улавливались в прокачной ловушке 13, охлаждаемой жидким азотом. Для проведения экстракции растворитель в мишенном устройстве выдерживался в течение 15 мин. После этого осуществлялся слив растворителя из мишени в вакуумированную приемную кварцевую колбу 12, охлажденную жидким азотом. Для этого последовательно открывались вентили *в11* и *в6*. После слива растворителя с извлеченным радионуклидом ^{123}I закрывались вентили *в6* и *в11*, от стенда отсоединялись мишенное устройство с вентилем *в6* и приемная кварцевая колба с вентилем *в11* для измерения в них активности ^{123}I .

5.5. Вакуумная отгонка растворителя

После измерения активности мишенное устройство и кварцевая колба подсоединялись к стенду и проводилась вакуумная отгонка растворителя из кварцевой колбы при комнатной температуре. Растворитель улавливался в прокачной ловушке 13, охлаждаемой жидким азотом. Продолжительность вакуумной отгонки растворителя составляла 20–30 мин. Отгонка проводилась до остаточного давления в колбе 5 Па. После завершения вакуумной отгонки приемная кварцевая колба 12 отсоединялась от стенда вместе с вентилем *в11* для измерения активности ^{123}I . После измерения активности кварцевая колба подсоединялась к стенду и вакуумировались коммуникации.

5.6. Смыв ^{123}I раствором 0.01 М NaOH

Путем последовательного открывания вентиля *в11* и *в9* в колбу подавался 0.01 М раствор NaOH в количестве 5 см³ для смыва радионуклида ^{123}I со стенок колбы. После этого перекрывались вентили *в11* и *в9*, коммуникации промывались небольшим количеством ацетона из шприца-дозатора 7 и вакуумировались коммуникации через прокачную ловушку 13. Далее приемная

Таблица 2. Эффективность выделения ^{123}I из мишенного устройства

Состав растворителя	Эффективность извлечения ^{123}I из мишени при смыве, %	Потери ^{123}I при отгонке растворителя, %	Общая эффективность извлечения ^{123}I , %
Ацетон 100%	84	17	70 ± 5
Диэтиловый эфир 100%	40	3	39 ± 5
Ацетон + Диэтиловый эфир 50: 50% об.	84	5	80 ± 5

кварцевая колба 12 отсоединялась от стенда и вручную с помощью шприца с капиллярной трубкой проводился отбор 0.01 М раствора NaOH. После отбора проводились измерения активности в кварцевой колбе и раствора в шприце для оценки эффективности смыва.

6. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Опыты по извлечению из мишенного устройства наработанного ^{123}I проводились с использованием ацетона, диэтилового эфира и смеси этих растворителей состава 50 : 50% об.

Для заполнения мишенного устройства растворителями оно предварительно вакуумировалось. При открывании вентиля растворители затягивались в него за счет перепада давлений. Результаты модельных экспериментов показали, что степень заполнения зависит как от вида растворителя, так и от условий заполнения. Заполнение проводилось при одинаковой температуре мишенного устройства, коммуникаций и растворителя. Заполняемость внутреннего объема мишени ацетоном составляла не менее 95% при условии вакуума в мишени и давления над жидким ацетоном 1 ата. В случае заполнения диэтиловым эфиром эффективность заполнения снижалась до уровня примерно 85%, при этом было необходимо создавать избыточное давление около 1 ата над жидким эфиром при заполнении. Повидимому, это связано с образованием паровой пробки в мишени вследствие высокой упругости паров диэтилового эфира. Заполненное растворителями мишенное устройство выдерживалось в течение 15 мин при комнатной температуре.

В зависимости от условий проведения процесса изменялась доля растворителя, извлекаемого из мишенного устройства. При сливании растворителя в вакуумированную кварцевую колбу 12, имеющую комнатную температуру, удавалось собрать 85% эфира и 90% ацетона, а при охлаждении колбы жидким азотом эффективность сбора приближалась к 100%. Охлаждение приемной кварцевой колбы 12 оказалось необходимым также для более плавного прохождения процесса от-

гонки, исключающего вскипание растворителя на начальной стадии.

Следующий этап – вакуумная отгонка растворителей из смыва, сконденсированного при температуре -196°C , проводилась при отогревании ловушки в атмосфере воздуха комнатной температуры. При использовании диэтилового эфира продолжительность вакуумной отгонки при одинаковых условиях сокращается примерно на треть по сравнению с использованием ацетона и составляет примерно 20 мин для диэтилового эфира и около 30 мин для ацетона.

Смыв полученного радионуклида ^{123}I из кварцевой колбы после вакуумной отгонки органических растворителей проводился 0.01 М раствором NaOH. В результате этой операции эффективность смыва, которая определялась по соотношению активности ^{123}I в колбе до и после смыва, составляла не менее 95%.

Эффективность извлечения ^{123}I из мишенного устройства и уровень потерь при отгонке растворителя оценивались по результатам измерений активности ^{123}I в мишенном устройстве и колбе до и после проведения операций. Результаты измерений представлены в табл. 2.

Сопоставление результатов, представленных в табл. 2, показывает, что эффективность извлечения радионуклида ^{123}I ацетоном в два раза выше, чем диэтиловым эфиром. В то же время, уровень потерь ^{123}I при вакуумной отгонке ацетона более чем в пять раз превышает уровень потерь при отгонке диэтилового эфира. Полученные результаты свидетельствуют о возможности дальнейшей оптимизации процессов путем изменения состава смеси растворителей. Это продемонстрировано использованием в качестве экстрагента смеси ацетона и диэтилового эфира состава 50: 50% об., обеспечившей наиболее высокий процент извлечения ^{123}I .

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана, изготовлена и протестирована лабораторная установка, на которой отработан

технологический процесс извлечения радионуклида ^{123}I из мишенного устройства путем смывания органическими растворителями. Продемонстрировано, что разрабатываемый метод позволяет извлекать не менее 80% ^{123}I , остающегося на внутренних стенках мишенного устройства за время облучения ^{124}Xe .

По мнению авторов, разработанная конструкция лабораторной установки и технологическая схема делают возможной автоматизацию процесса, что позволит сократить время от окончания облучения до извлечения ^{123}I из мишенного устройства и дополнительно извлекать радионуклид ^{123}I в количестве равном или превышающем активность нарабатываемого ^{123}I по существующей технологии без увеличения временной загрузки циклотрона.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт”, приказ № 98 от 20.01.2023 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Левин В.И., Попович В.Б., Малинин А.Б., Куренков Н.В.* SU671194A1. Советский патент 1980 года по МПК C01B7/00.
2. *Флеров Г.Н., Оганесян Ю.Г., Белов А.Г., Стародуб Г.Я.* Препринт ОИЯИ № 18-85-750, 1985.
3. *Алексеев Е.Г., Гусельников В.С., Зайцев В.М.* SU1709399A1. 1989. Советский патент 1992 года по МПК G21G1/10.
4. *Веников Н.И., Воробьев О.А., Новиков В.И., Себякин А.А., Соколов А.Ю., Фомичев Д.И., Шабров В.А.* Препринт ИАЭ-4934/14, 1989 г.
5. *Веников Н.И., Себякин А.А.* Патент SU 1661842. // Бюллетень № 25 от 07.07.1991 г.
6. *Firouzbakht M.L., Teng R.R., Schlyer D.J., Wolf A.P.* // *Radiochimica Acta.* 1987. V. 41. P. 1. <https://doi.org/10.1524/ract.1987.41.1.1>
7. *Tarkanyi F., Quaim S.M., Stöcklin G., Sajjad M., Lambrecht R.M., Schweickert H.* // *Intern. J. Radiat. Appl. Instrument. Part A. Appl. Radiat. Isotop.* 1991. V. 42. P.221. [https://doi.org/10.1016/0883-2889\(91\)90080-K](https://doi.org/10.1016/0883-2889(91)90080-K)
8. *Oberdorfer F., Meissner M., Tiede A., Schweickert H.* IAEA-RC-1025.3 2009.