

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

УДК621.384.64 539.163

**ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПРИМЕНЕНИЯ ЛИНЕЙНОГО
УСКОРИТЕЛЯ И-2 ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ МЕДИЦИНСКИХ
РАДИОИЗОТОПОВ¹**

**© 2024 г. Н. В. Марков^{а,*}, А. А. Артюхов^а, В. А. Загрядский^а,
А. В. Козлов^а, К. О. Королев^а, Т. В. Кулевой^а, К. А. Сергунова^а,
И. И. Скобелин^а, В. С. Столбунов^а**

^аНациональный исследовательский центр “Курчатовский институт”

Россия, 123060, Москва, пл. Академика Курчатова, 1

**e-mail: markov@itep.ru*

Поступила в редакцию 01.12.2023 г.

После доработки 06.03.2024 г.

Принята к публикации 01.04.2024 г.

Одним из возможных вариантов применения линейного ускорителя протонов И-2 Курчатовского комплекса теоретической и экспериментальной физики (ККТЭФ) является наработка различных типов радиоизотопов. Представлены результаты первых экспериментальных исследований по измерению основных параметров пучка, облучению газообразной мишени ¹²⁴Xe и выделения из нее радиоизотопа ¹²³I. На основе полученных результатов разработаны предложения по модернизации систем ускорителя, а также конструкции мишени с целью обеспечения возможности получения активностей ¹²³I на уровне нескольких ГБк.

1. ВВЕДЕНИЕ

На сегодняшний день ускорители тяжелых заряженных частиц находят все более широкое применение в медицине как с точки зрения развития и усовершенствования технологий дистанционной лучевой терапии (протонная и ионная лучевые терапии), так и с точки зрения внедрения новых методов ядерной медицины (получение терапевтических и диагностических радиоизотопов). Если говорить про применение ускорителей в ядерной медицине, то здесь, помимо ускорителей низких энергий (до 20 МэВ), используемых для получения радиоизотопов, применяемых в позитронно-эмиссионной томографической

¹ Материалы 28-й конференции по ускорителям заряженных частиц “RuPAC’23”, Новосибирск.

диагностике (^{18}F , ^{13}N , ^{11}C), все больший интерес представляют ускорители средних (20–35 МэВ) и высоких энергий (более 35 МэВ). Это обусловлено в первую очередь возрастающим спросом на радиоизотопную продукцию, выводом из эксплуатации многих ядерных реакторов, использовавшихся для получения медицинских радиоизотопов, а также развитием направления тераностики в ядерной медицине и поиском новых перспективных радиоизотопов для диагностики и терапии.

При этом с точки зрения ускорительных технологий наиболее распространенными типами ускорителей, используемых для наработки радиоизотопов, являются циклотроны. Однако регулярно во многих странах мира появляются проекты, нацеленные на создание специализированных линейных ускорителей. Среди преимуществ этого подхода можно выделить возможность создания установки с выводами пучка различных энергий (тем самым расширив перечень производимых изотопов), среди недостатков можно отметить более низкие значения среднего тока пучка (что приводит к получению меньших активностей), а также большие габариты линейного ускорителя. Как следствие, сегодня на рынке представлены в основном циклотроны, в то время как линейные ускорители, используемые для получения радиоизотопов, представляют собой научно-исследовательские установки.

В настоящее время в ККТЭФ успешно эксплуатируется линейный ускоритель протонов И-2, ранее использовавшийся в качестве инжектора синхротрона У-10. Основная область применения связана с проведением исследований в области изучения радиационной стойкости электронно-компонентной базы, а также с проведением технологического облучения элементов силовой полупроводниковой электроники. Кроме того, проводятся исследования в области радиобиологии и ускорительной техники. В соответствии с проектными параметрами (энергия протонов в выводном канале 24.5 МэВ, средний ток пучка 2.5 мкА) ускоритель также можно использовать и для получения различных типов радиоизотопов. В рамках развития этого направления совместно со специалистами Курчатовского комплекса физико-химических технологий (ККФХТ) были начаты исследования по изучению возможности получения на ускорителе И-2 клинически значимых активностей радиоизотопа ^{123}I , применяемого при проведении однофотонной эмиссионной компьютерной томографии.

2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В рамках выполнения описываемых работ было проведено два эксперимента. В ходе первого эксперимента проводились исследования с имитатором мишени с целью определения основных параметров пучка в месте его расположения (геометрические

размеры пучка, ток пучка, энергия протонов на входном окне мишени). Непосредственно облучение самой мишени проводилось во время второго эксперимента. При облучении мишень была заполнена газом ^{124}Xe , в котором под воздействием протонного облучения образовывался искомый радиоизотоп ^{123}I в результате следующей цепочки распада: $^{124}\text{Xe} (p, 2n)^{123}\text{Cs} \rightarrow ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$.

2. 1. Облучение имитатора мишени

Для проведения первого эксперимента было принято решение расположить имитатор мишени на выводном канале линейного ускорителя И-2, используемого в настоящее время для проведения облучения электронно-компонентной базы. Выбор данного места был обусловлен наличием диагностического оборудования, позволяющего контролировать параметры пучка. Схема выводных каналов ускорителя И-2 и место расположения имитатора мишени представлена на рис. 1. Мишень была зафиксирована на оптической подставке, установленной на оптическом рельсе (рис. 2). Расстояние от выходного окна ионопровода до торца входного фланца мишени составило 118 мм.

Рис. 1. Схема выводных каналов ускорителя И-2 и место расположения имитатора мишени.

Рис. 2. Место расположения имитатора мишени.

Для контроля положения пучка в процессе облучения мишени на входной фланец мишени был наклеен пластиковый сцинтиллятор с центральным отверстием 17 мм. В процессе облучения свечение сцинтиллятора регистрировалось ТВ-камерой, расположенной под углом 45 градусов к оси распространения пучка. Также для проведения активационных измерений за входным фланцем мишени были размещены три мониторные фольги (одна медная фольга толщиной 5 мкм и две титановых фольги толщиной 24 мкм каждая). По результатам проведения активационного измерения определялись значения энергии пучка в месте расположения мониторных фольг, а также ток пучка, проходящего через отверстие входного фланца имитатора мишени. Для обеспечения максимально приближенного реального режима облучения мишени внутренний объем имитатора мишени был предварительно наполнен аргоном под давлением 3 атм.

Непосредственно перед проведением облучения имитатора мишени были проведены измерения основных параметров пучка. Для определения геометрических размеров пучка в месте размещения имитатора мишени был установлен сцинтиллятор из керамики. Изображение пучка на сцинтилляторе регистрировалось ТВ-камерой. Полученное изображение приведено на рис. 3.

Рис. 3. Изображение пучка на сцинтилляторе из керамики.

Для измерения тока пучка использовался цилиндр Фарадея, который также располагался в месте установки имитатора мишени. Ввиду того, что на цилиндр Фарадея была установлена диафрагма с площадью отверстия 1 см^2 для корректировки положения центра пучка относительно центра отверстия, на входной торец диафрагмы также был наклеен пластиковый сцинтиллятор с отверстием в центре (рис.4).

Рис. 4. Место расположения цилиндра Фарадея и изображение пучка на пластиковом сцинтилляторе, зарегистрированное камерой.

Осциллограмма выходного сигнала с цилиндра Фарадея приведена на рис.5. Плотность потока частиц в импульсе и средний ток пучка определялись путем интегрирования выходного сигнала с цилиндра Фарадея. Из представленной осциллограммы видно, что длительность импульса пучка составляла порядка 20 мкс (по основанию).

Рис. 5. Осциллограмма выходного сигнала с цилиндра Фарадея.

Для получения требуемых для проведения активационных измерений значений было необходимо осуществить облучение имитатора мишени с установленными мониторными фольгами в течение 5 часов. В процессе облучения положение пучка на мишени контролировалось по свечению сцинтиллятора. Активационные измерения облученных мониторных фольг проводились на площадке ККФХТ.

2. 2 Облучение мишени с ксеноном

В процессе проведения облучения мишень располагалась в том же месте, что и имитатор мишени. Перед проведением облучения были проведены измерения геометрических размеров пучка (по изображению пучка на сцинтилляторе из керамики), а также тока пучка (по сигналу с цилиндра Фарадея).

На стадии подготовки эксперимента в ККФХТ внутренний объем мишени был предварительно наполнен ксеноном (обогащение ^{124}Xe 99.9%) под давлением 4 атм. Также для проведения активационных измерений за входным фланцем мишени была размещена мониторная фольга из титана толщиной 24 мкм. Аналогичная фольга располагалась внутри газового объема мишени непосредственно перед задней стенкой мишени. По активности монитора на входе определялся поток протонов, попавших в мишенное устройство. Принимая, что поток протонов при прохождении мишенного устройства остается неизменным, по активности монитора на выходе определялась соответствующая энергия протонов после прохождения газового объема.

Для экспериментальной оценки значений активности ^{123}I , получаемой в процессе облучения на ускорителе И-2, было решено провести облучение в течение 1.5 часов. Такой временной интервал обусловлен с одной стороны необходимостью наработки достаточной для дальнейших исследований активности изотопа, а с другой стороны, требованием, чтобы активность изотопа не превышала значения минимально-значимой активности (МЗА) для ^{123}I , соответствующей значению 10^7 Бк. Активационные измерения облученных фольг, а также процесс выделения радиоизотопа ^{123}I из мишени проводился на следующий день после облучения на площадке ККФХТ.

2. 3. Проведение активационных измерений

Измерения проводились с помощью гамма-спектрометра с детектором из сверхчистого германия ORTEC GEM серии 35P4 (США). Мишени во время измерений устанавливались на расстоянии 6 см и 11.5 см над поверхностью детектора. “Мертвое” время не превышало 10 %. Энергетическая зависимость эффективности регистрации γ -квантов детектором определялась экспериментально с помощью образцовых спектрометрических гамма-источников из комплекта образцовых источников гамма-излучения.

Измерения были выполнены по реакциям $^{nat}\text{Ti}(p,x)^{48}\text{V}$ и $^{nat}\text{Cu}(p,x)^{62}\text{Zn}$. Активность радиоизотопа ^{48}V в мониторах определялась по пикам полного поглощения γ -квантов: по линии $E_\gamma = 983.5$ кэВ ($K_\gamma = 99.99$ %) и $E_\gamma = 1312$ кэВ ($K_\gamma = 97.49$ %), а активность радиоизотопа ^{62}Zn в мониторах определялась по пикам полного поглощения γ -квантов: по линии $E_\gamma = 548.3$ кэВ ($K_\gamma = 15.3$ %) и $E_\gamma = 596.6$ кэВ ($K_\gamma = 26.0$ %).

2. 4. Измерение активности радиоизотопа ^{123}I

Определения активности радиоизотопа ^{123}I , наработанного в мишени, проводилось следующим образом. Мишень подсоединялась к газовому стенду и из него криогенным методом удалялся стартовый изотоп ^{124}Xe . После этого осуществлялось вскрытие мишени с последующим смывом ^{123}I с внутренних поверхностей с помощью ацетона. Из смыва, составившего 8 см^3 , отбиралась микропипеткой аликвота объемом 300 мкл и измерялась в ней активность ^{123}I . Активность ^{123}I определялась по пику полного поглощения по линии $E_\gamma = 159$ кэВ ($K_\gamma = 82.9$ %).

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Значения геометрических размеров пучка (ширина на полувысоте) на входном фланце имитатора мишени и мишени в ходе первого и второго экспериментов соответственно приведены в табл. 1.

Таблица 1. Размеры пучка на входном фланце имитатора мишени и мишени

	Значение параметра a , мм	Значение параметра b , мм

Эксп. 1	58.5	21.8
Эксп. 2	62.9	28.8

Из представленных данных следует, что во время облучения мишени настройки магнитной оптики были не оптимальны, что привело к уменьшению числа частиц, проходящих через отверстие во входном фланце мишени по сравнению с первым экспериментом. Это также видно из результатов определения среднего тока пучка, как с помощью цилиндра Фарадея, так и с помощью активационных мониторинговых фольг (табл. 2).

На основании результатов активационных измерений мониторинговых фольг из меди и титана, располагавшихся за входным фланцем имитатора мишени в ходе выполнения первого эксперимента, было определено значение энергии протонов на входе в мишень. Полученное значение составило 22.5 ± 0.3 МэВ. Энергия протонов на выходе из ^{124}Xe , определенная по результатам измерения активности выходного монитора, располагавшегося на задней стенке внутреннего объема мишени в процессе второго эксперимента, составила 20.84 МэВ. Таким образом, энергия протонов при прохождении газового объема мишени уменьшилась на 1.16 МэВ (с учетом потерь 0.5 МэВ во входном алюминиевом окне мишени).

Таблица 2. Значения среднего тока пучка, определенные с помощью цилиндра Фарадея и активационных фольг

	Средний ток пучка, мкА/см ² (цилиндр Фарадея)	Средний ток пучка, мкА/см ² (мониторные фольги)
Эксп. 1	0.045	0.043
Эксп. 2	0.034	0.034

Суммарная активность радиоизотопа ^{123}I , выделенная из мишени на момент измерения, составила $3.175 \cdot 10^6$ Бк. Приведенная к моменту времени, когда почти 90% наработанного ^{123}Xe распалось в ^{123}I (6 часов после окончания облучения), активность ^{123}I составила $8.11 \cdot 10^6$ Бк.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

На основании полученных значений активностей радиоизотопа ^{123}I было определено, что в текущей конфигурации (существующая мишень и текущие параметры работы ускорителя) за 24 часа облучения возможно получение активности радиоизотопа ^{123}I на уровне $7.68 \cdot 10^7$ Бк (с учетом распада ^{123}I за время облучения). Такое значение может представлять интерес только с точки зрения исследовательской работы, но никак не может

рассматриваться как клинически значимые активности. Для увеличения выхода целевого радиоизотопа ^{123}I были рассмотрены следующие изменения существующей схемы облучения:

- Модификация мишени путем увеличения апертуры входного отверстия с сопутствующей оптимизацией настройки магнитной оптики ускорителя с целью формирования поля пучка меньшего размера с сохранением интенсивности.
- Увеличение длительности пучка с текущих 20 мкс до 60 мкс с сохранением существующей частоты следования импульсов.

Эти два изменения позволят увеличить значение среднего тока пучка на мишени до 0.4 мкА. Замена алюминиевой фольги выходного окна ионопровода толщиной 500 мкм на фольгу толщиной 250 мкм позволит уменьшить потери энергии пучка на 1 МэВ, в результате чего значение энергии протонов на входе в мишень составит 23 МэВ. По проведенным оценкам это может увеличить активность получаемого радиоизотопа ^{123}I в два раза. Таким образом, с учетом описанных изменений сеанс облучения продолжительностью 24 часа позволит получение активности радиоизотопа ^{123}I на уровне 1.3 ГБк.

Дополнительного увеличения получаемой активности можно добиться за счет увеличения толщины мишени (переход к так называемой “толстой” мишени). Согласно экспериментальным данным, энергия протонов на выходе из ^{124}Xe составляла 20.84 МэВ. Согласно данным, приведенным в рекомендованном МАГАТЭ источнике [1], доля выхода ^{123}Cs (предшественник ^{123}I в используемой цепочке распада) в области от 20.84 МэВ до порога реакции около 7 МэВ в 2.05 раза превышает соответствующий выход в области 22.0–20.84 МэВ (рабочий диапазона энергий протонов в эксперименте). Откуда следует, что за счет использования “толстой” мишени выход ^{123}I может быть увеличен по сравнению с результатами, полученными в эксперименте, в 3.05 раза.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведен первый эксперимент по облучению мишени, наполненной ксеноном, для оценки возможных активностей радиоизотопа ^{123}I , получаемых при облучении протонами на линейном ускорителе протонов И-2. В процессе исследований экспериментально измерены значения энергии пучка на входе в мишень, определены потери энергии пучка в объеме газовой мишени, также проведено измерение значения среднего тока пучка в месте расположения мишени с использованием двух независимых методов. Осуществлено выделение радиоизотопа ^{123}I и определено значение его активности. В рамках дальнейших исследований предложены и рассмотрены возможные варианты модернизации установки и мишени с целью увеличения активности получаемого радиоизотопа ^{123}I .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Charged particle cross-section database for medical radioisotope production: diagnostic radioisotopes and monitor reactions. IAEA. Vienna. IAEA-TECDOC-1211. ISSN 1011-4289. 2001.

ПОДПИСИ К РИСУНКАМ

Рис. 2. Схема выводных каналов ускорителя И-2 и место расположения имитатора мишени.

Рис. 2. Место расположения имитатора мишени.

Рис. 3. Изображение пучка на сцинтилляторе из керамики.

Рис. 4. Место расположения цилиндра Фарадея и изображение пучка на пластиковом сцинтилляторе, зарегистрированное камерой.

Рис. 5. Осциллограмма выходного сигнала с цилиндра Фарадея.

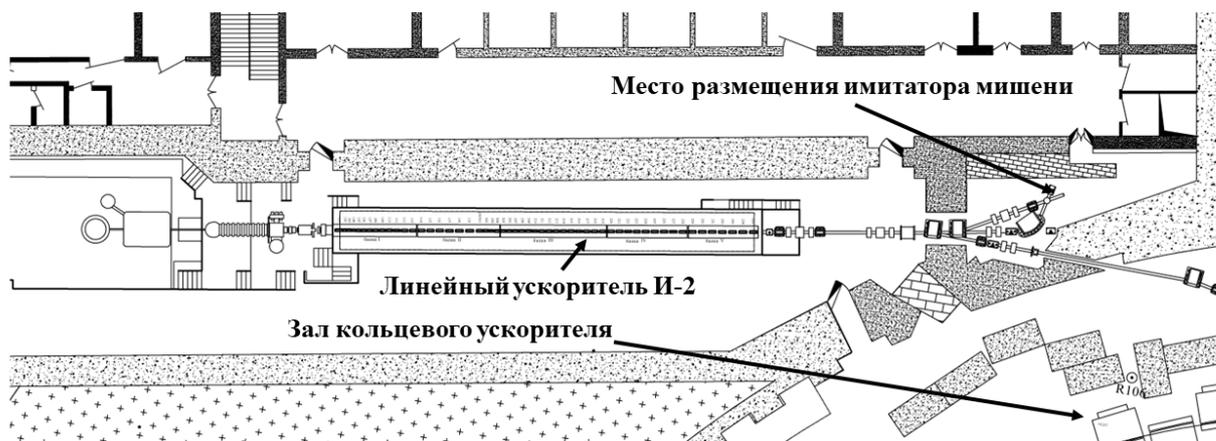


Рис. 1



Рис. 2

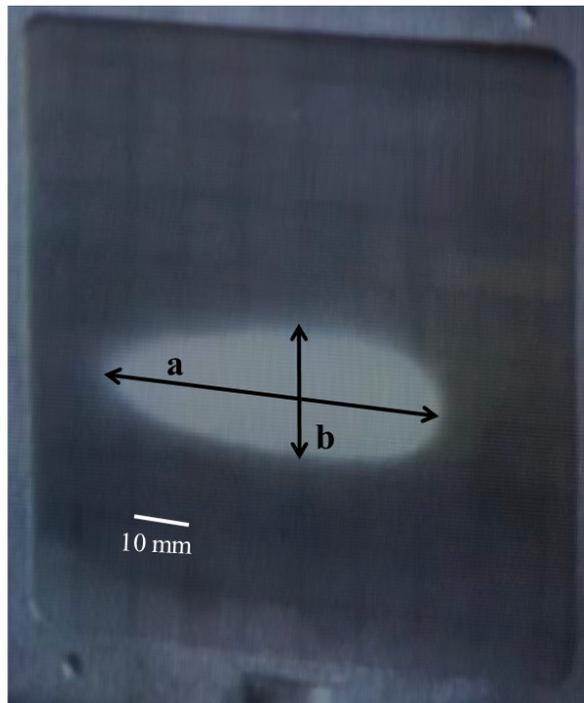


Рис. 3

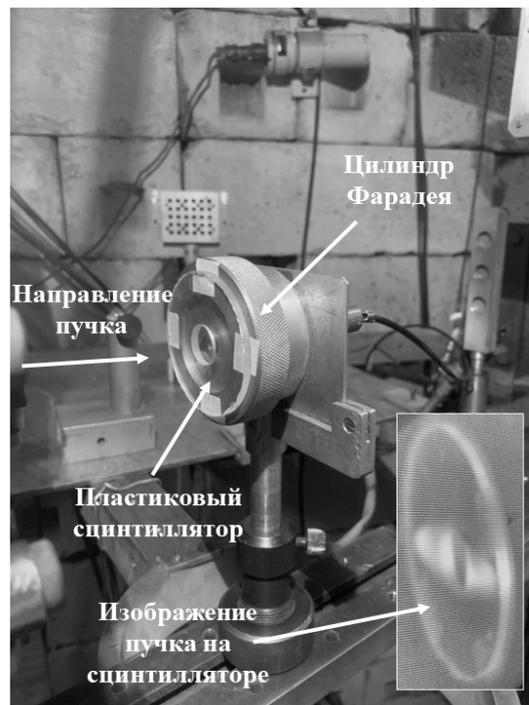


Рис. 4

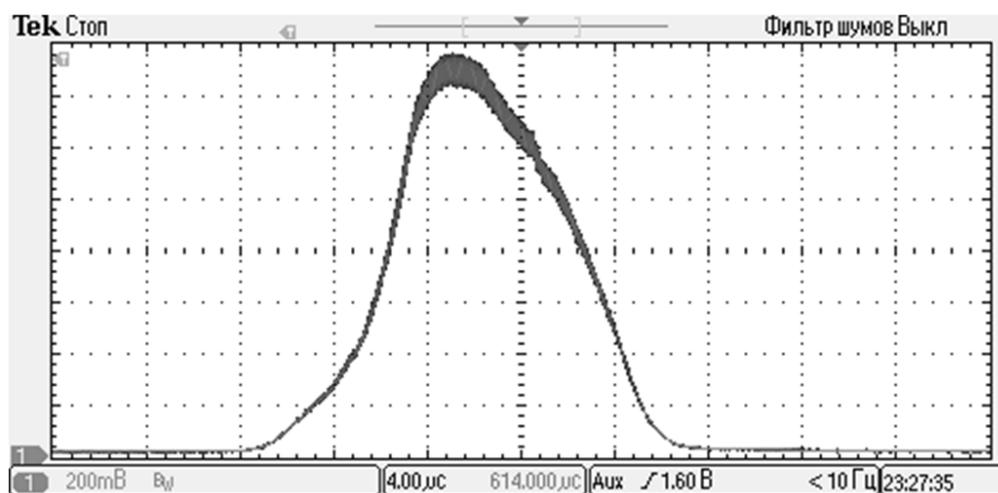


Рис. 5

Для связи с авторами:

Марков Николай

E-mail: markov@itep.ru

Тел.: 8-925-170-45-77 (моб.)

~~Для переводчика:~~

~~INVESTIGATION OF THE I-2 LINEAR ACCELERATOR IMPLEMENTATION CAPABILITIES FOR MEDICAL RADIOISOTOPES PRODUCTION~~

~~One of the possible field of usage of the I-2 linear proton accelerator of the Kurchatov Complex of Theoretical and Experimental Physics (KCTEP) is the production of various types of radioisotopes. In this paper the results of the first experimental studies are presented. In the framework of these studies the main parameters of the proton beam were measured. Also irradiation of a gaseous Xe-124 target with the further extraction of the I-123 radioisotope from it were performed. Based on the results obtained, proposals for the further accelerator systems upgrading, as well as the improvement of the target design have been considered. The main purpose of these improvement is to ensure the possibility of obtaining I-123 activities at the level of several GBq.~~