



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

3257/2-81

29/6-81

P6-81-178

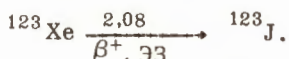
Н.Г.Зайцева, О.Кнотек, В.И.Соболев,
В.А.Халкин, З.Гонс

ПОЛУЧЕНИЕ ^{123}J
НА СИНХРОЦИКЛОТРОНЕ ЛЯП ОИЯИ

Направлено в "Int. Journal Appl. Radiat. Isotopes"

1981

В основе производства ^{123}J в настоящее время лежит генераторный метод получения радиойода из радиоксенона:



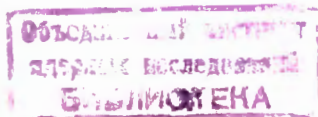
Этот способ обеспечивает высокую радионуклидную чистоту препаратов ^{123}J и относительно простое конструктивное оформление технологического процесса. На изохронных циклотронах с энергией протонов до 80 МэВ ^{123}Xe получают в ядерных реакциях $^{127}\text{J}(p, 5n)^{123}\text{Xe}$, реже используют реакции с дейтронами $^{127}\text{J}(d, 6n)^{123}\text{Xe}$. Материалами мишеней служат иодиды щелочных металлов и растворы элементарного йода в дийодметане $^{1-5}$. На ускорителях промежуточных энергий $100 \leq E_{\text{частиц}} \leq 1000$ МэВ/ ^{123}Xe образуется в реакциях расщепления Cs, Ba или La $^{6-8}$.

Независимо от энергии частиц все устройства для получения ^{123}J генераторным методом в принципе состоят из двух структурных частей, мишени и сборника радиоксенона, соединенных трубкой для транспортировки радиоактивного газа. Выделение и сбор радиоксенона производятся или во время облучения /он-лайн процесс/, или после облучения и доставки мишени в радиохимическую лабораторию /офф-лайн процесс/. В литературе есть описание нескольких технологических устройств, которые используются для получения ^{123}J генераторным методом 1,4,9 .

В настоящей работе приводится общая схема он-лайн процесса получения радиойода из радиоксенона при облучении CsCl на синхроциклотроне Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ. Она разрабатывалась, во-первых, для того, чтобы изучить возможность приготовления спалогенных препаратов ^{123}J с допустимой для ядерной медицины радионуклидной чистотой и, во-вторых, как модель организации производства ^{123}J на базе реконструируемого синхроциклотрона - установки $^{10}\text{Ф}^1$ / $E_p=700$ МэВ, интенсивность выведенного пучка протонов 30-40 мкА/. В связи с этим рассматриваются вопросы конструкции мишени, ловушек, а также транспортировки радиоксенона.

ОБЩАЯ СХЕМА УСТАНОВКИ

На рис.1 показана схема установки для получения, выделения и сбора радиоксенона в он-лайн процессе. Мишень устанавливалась в зале ускорителя на специальной подставке строго по оси



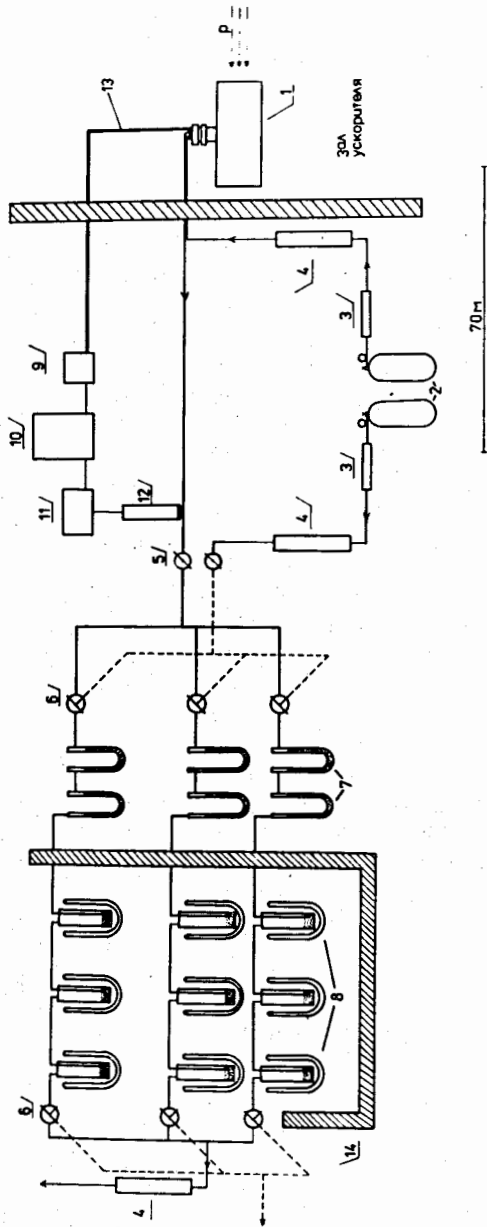


Рис.1. Общая схема установки для выделения и сбора радиоксенона из расплава CsCl: 1 - мишень; 2 - баллон с газом; 3 - ловушка с цеолитом; 4 - ротаметр; 5 - двухходовый кран; 6 - трехходовый кран; 7 - ловушки для очистки и высушивания газа; 8 - ловушки для поглощения ксенона; 9 - миллиамперметр; 10 - самописец; 11 - счетная установка; 12 - сцинтилляционный счетчик; 13 - термомпара; 14 - биологическая защита.

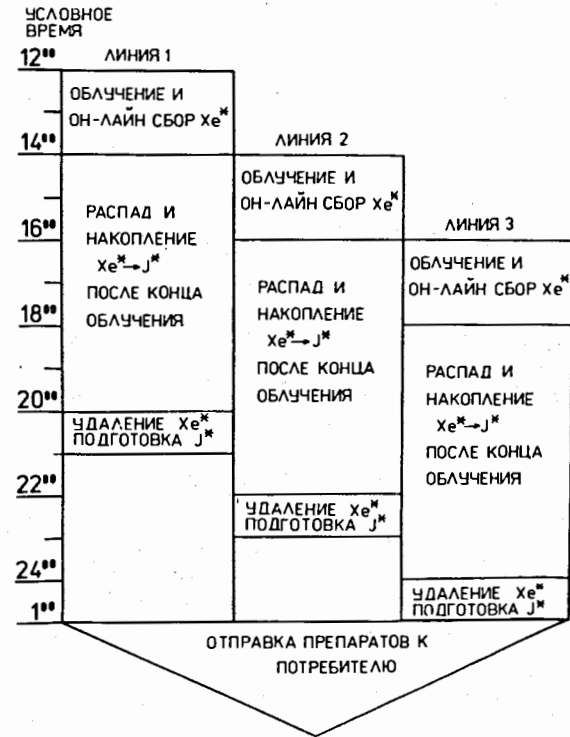


Рис.2. Схема он-лайн процесса получения ^{123}J из ^{123}Xe в одном сеансе работы на ускорителе.

выведенного пучка протонов. Для подачи гелия и отвода радиоактивных газов к мишени подводились полихлорвиниловые толстостенные $\sim 1,5$ мм/ трубки диаметром 4 мм и длиной ~ 70 м. Поступающий из баллона гелий сушили на молекулярных ситах, его расход контролировали ротаметрами. Рабочая объемная скорость гелия была 100 ± 10 мл/мин. Температуру материала мишени 650°C / измеряли термопарой, активность газа в отводящей трубке - сцинтилляционным счетчиком. Датчики были соединены с регистрирующей и с записывающей аппаратурой.

Активный газ из транспортной трубки проходил через осушители и поступал по одной из линий в первую из трех ловушек, в которой радиоксенон вымораживался при -196°C . Вторая и третья ловушки служили для глубокой очистки гелия от следов радиоксенона и для сброса радиоксенона из первой ловушки после накоп-

ления в ней йода. Для удаления ксенона ловушку размораживали и нагревали, одновременно промывая гелием из баллона, не связанного с мишенью. Линии ловушек собирали за биологической защитой, и распределение газа по ловушкам осуществляли дистанционно системой вакуумных металлических кранов, смонтированных на одной панели. Три линии ловушек позволяли при необходимости одновременно вести сбор радиоксенона из мишени, накопление йода, сброс радиоксенона и последующее вымывание йода из ловушки /рис.2/.

МИШЕНЬ

Мишенью служил заполненный хлоридом цезия прямоугольный контейнер /рис.3/ размером $40 \times 60 \times 150$ мм³, сваренный из 0,5 мм листа нержавеющей стали марки Х18Н9Т. К крышке контейнера приварен штуцер диаметром 20 мм и высотой 150 мм, закрывающийся накидной гайкой с тефлоновым уплотнением. Через накидную гайку проходят трубки для газа и канал-капсула для термопары. Контейнер с четырех сторон обогревался электропечью мощностью ~500 Вт; торцевые стенки контейнера, перпендикулярные к протонному пучку, не обогревались. Нагрев печи регулировали автотрансформатором. Вся кон-

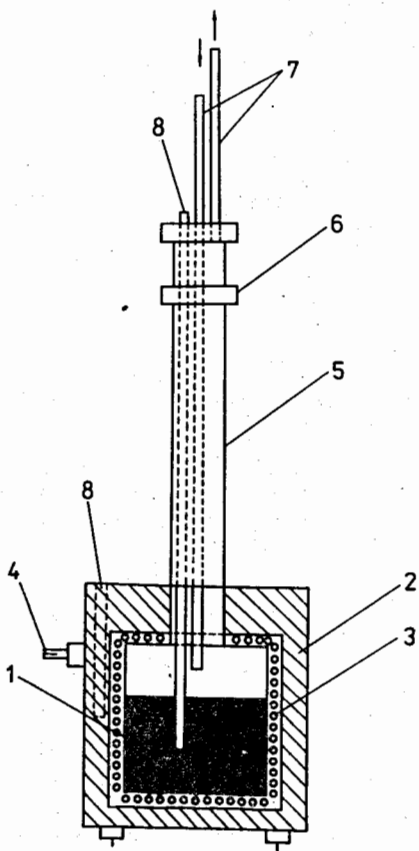


Рис.3. Контейнер для хлористого цезия /разрез нижней части, перпендикулярный к направлению пучка протонов/: 1 - внутренняя часть с расплавом CsCl; 2 - теплоизолирующий корпус; 3 - электроспираль; 4 - контакты для электропровода; 5 - штуцер; 6 - накидная гайка; 7 - трубки для ввода и вывода газа; 8 - канал-капсула для термопары /внутренняя и внешняя/.

струкция для уменьшения теплотерь помещалась в теплоизолирующий корпус. Общие габариты мишени /без штуцера/ были $80 \times 100 \times 160$ мм³, масса ~2,5 кг. Хлористый цезий массой около 1 кг плавился через 40-50 мин после включения печи на полную мощность.

Мишень использовали в течение всей серии экспериментов по исследованию возможности получения и применения спалогенного ^{123}J для ядерной медицины. Суммарная экспозиция в протонном пучке составляла около 120 ч сеансами по 6-8 ч. Успешный опыт длительной эксплуатации мишени показал, что хромникелевые стали - подходящий материал для изготовления контейнера для облучения расплава CsCl при $650-680^\circ\text{C}$. Приведенную принципиальную схему конструкции мишени можно использовать при проектировании устройства мишеней для облучения выведенным пучком протонов на установке "Ф".

ТРАНСПОРТ РАДИОКСЕНОНА

При работе в режиме он-лайн выход радиоксенона определяется скоростью поступления газа из мишени в ловушку: чем короче время от момента образования атома ксенона до его адсорбции в ловушке, тем меньше потери ^{123}J за счет радиоактивного распада ^{123}Xe на пути к ловушке. Время транспортировки Xe^* определяется двумя факторами: временем, необходимым для выделения радиоксенона из слоя расплавленного CsCl в газовую фазу, и временем его транспортировки с потоком гелия от мишени до ловушки. Ускорить первый процесс путем барботирования гелия через расплавленную соль было трудно по техническим причинам, так как это приводило к тому, что штуцер забивался кристаллами CsCl. Поэтому конец трубки, подводящей газ, пришлось расположить на уровне верхней части контейнера, как показано на рис.3, и обдуть гелием только поверхность расплава.

Для оценки скорости выделения /транспортировки/ радиоксенона из материала мишени в этих условиях был измерен при выключенном ускорителе спад интенсивности гамма-лучей $^{121}\text{Xe} / E_\gamma : 132$ и 310 кэВ/ и $^{123}\text{Xe} / E_\gamma : 148$ и 330 кэВ/ в потоке газа, проходившем по трубке над Ge(Li) - детектором, расположенным рядом со сцинтилляционным счетчиком /рис.1/. Детектор был подсоединен к 4096-канальному анализатору, работавшему на линии с ЭВМ НР-2116. Измерения показали, что количество ^{121}Xe в газовой смеси падало в 2 раза через 6-8 мин, а ^{123}Xe - через 11-12 мин после выключения ускорителя /рис.4/. Более продолжительное время полувыведения в последнем случае связано с накоплением ^{123}Xe из $^{123}\text{Cs} / T_{1/2} = 5,6$ мин/. Следовательно, радиоксенон выделялся из толстого слоя расплавленного CsCl

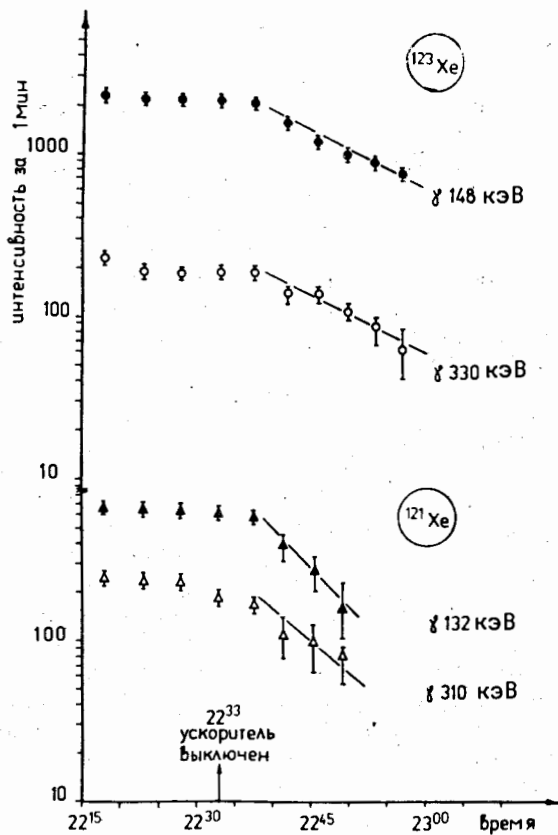


Рис. 4. Спад активности ^{121}Xe и ^{123}Xe после окончания облучения CsCl.

/ 45 мм/ относительно быстро: среднее время пребывания атомов ксенона в расплаве при $650-670^\circ\text{C}$ составляло не более 15 мин.

Транспортировка радиоксенона из контейнера в ловушку при данных геометрических параметрах /диаметре и длине трубок/ в токе гелия занимала 7-8 мин. Таким образом, ксенон попадал в ловушку через ~ 20 мин после образования в ядерных реакциях. Потери ксенона за это время за счет распада составляли не более 15%.

Таблица

Активность изотопов йода /мКи/ в момент удаления радиоксенона из ловушки /он-лайн процесс, время транспортировки газа - 7 мин., CsCl 54 г/см² /

№ п/п	Условия эксперимента	^{121}J		$^{123}\text{J} / ^{121}\text{J}$	
		Расчет-Экспериментальные данные	Расчет-Экспериментальные данные	Расчет-Экспериментальные данные	Расчет-Экспериментальные данные
1.	Время облучения и сбора Xe^* /час/	5	0,34	0,39	1,147
	Поток частиц	$7,1 \cdot 10^{10}$	0,30	0,39	1,30
2.	Время от конца облучения до удаления Xe^* из ловушки /час/	4	0,58	0,54	0,948
	Протон / мишень · с	$5,1 \cdot 10^{10}$	0,54	0,54	1,00

Заключение о быстром выделении радиоксенона из расплавленного CsCl подтверждается хорошим совпадением теоретических выходов ^{121}J и ^{123}J ^{7'}, рассчитанных на основе экспериментальных сечений образования материнских ядер ксенона с поправкой на известное время транспортировки, и экспериментальных выходов, полученных из гамма-спектрометрических измерений радиойода, накопившегося в ловушке /см. таблицу/.

ЛОВУШКИ ДЛЯ РАДИОКСЕНОНА

Радиоксенон адсорбировали из потока гелия при -196°C на окиси алюминия /марки "для хроматографии", размер частиц 50-70 мкм/^{7'} в стеклянной ловушке /рис.5/. Газ поступал к адсорбенту по центральной трубке, соединенной с корпусом ловушки металлическим тройником, имеющим накидные гайки с резиновыми уплотнениями. К входу и выходу ловушки были подсоединены заглушки с уплотнениями из резиновых пробок /от пенициллиновых склянок/. Ловушка подсоединялась к системе транспортировки газа через иглу, изготовленную на основе медицинской иглы для внутривенных вливаний и имеющую высверленные боковые отверстия. Такой способ соединения шлангов позволял быстро менять ловушки без их разгерметизации.

Этот тип ловушек оказался предпочтительнее U-образных ловушек^{6'}, которые довольно быстро забиваются льдом, так как

поступающий в них газ практически невозможно полностью очистить от влаги, и, кроме того, U-образные ловушки неудобны для элюирования радиойода с сорбента. Описанная здесь ловушка свободна от этих

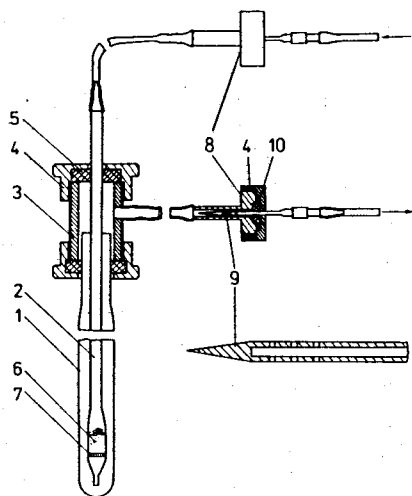


Рис.5. Ловушка для поглощения радиоксенона: 1 - пробирка; 2 - трубка для подачи газа; 3 - уплотняющий тройник; 4 - накидные гайки; 5 - резиновые прокладки; 6 - сорбент; 7 - стеклянный фильтр; 8 - узел ввода иглы; 9 - игла с боковыми отверстиями; 10 - резиновая пробка.

недостатков: вымораживаемая влага не закупоривала ловушку при прохождении через сорбент ~20 л гелия, элюирование радиойода легко проводить за биологической защитой. Кроме того, ловушку в собранном виде можно отправлять в контейнере к потребителю, не проводя элюирования йода. Это целесообразно потому, что за время доставки происходит очистка препарата от ^{121}J за счет его распада в ^{121}Te , который остается на сорбенте при элюировании йода^{7'}. Следует также отметить, что в закрытой ловушке сорбент с радиойодом находится в атмосфере гелия, и тем самым исключается окисление радиойода при транспортировке.

Такая организация эксперимента была осуществлена в совместных работах ОИЯИ с Отделом производства изотопов в Центральном институте физических исследований /Россендорф, ГДР/ и Отделением ядерной медицины АМН К.Г.Карус /Дрезден, ГДР/. В препаратах ^{123}J , поступавших из Дубны, содержание ^{125}J , ^{121}J и ^{121}Te было равно или менее 0,35; 3,0 и 0,03% соответственно^{10/}. Проведенные исследования позволили сделать заключение о пригодности препаратов спалогенного ^{123}J для целей ядерной медицины.

В заключение авторы выражают благодарность А.М.Озерову и М.Адилбиш за помощь в проведении экспериментов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bett R. et al. J.Radioanal.Chem., 1980, 56, p.237.
2. Schimmel A., Kaspersen F.M., Lindner L. Int. J.Appl. Radiat. Isotopes, 1979, 30, p.63.
3. Lindner L. et al. Proc. Symp. Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds, Copenhagen, 1973, vol.1, p.303. IAEA, Vienna, 1973.
4. Godart J., Barat J.L., Menthe A. Int.J.Appl.Radiat. Isotopes, 1977, 28, p.967.
5. Weinreich R. et al. J.Radioanal.Chem., 1976, 30, p.53.
6. Алексеев Е.Г. и др. Препринт ЛИЯФ, №382, Л., 1978.
7. Adilbish M. et al. J.Appl.Radiat.Isotopes, 1980, 31, p.163.
8. Peek N.F., Hegedüs F. Int.J.Appl.Radiat.Isotopes, 1979, 30, p.631.
9. Lagunas-Solar M.C. et al. Trans.Amer.Nucl. Soc., 1979, 33, p.922.
10. Beyer G.J. et al. Jahresbericht 1979, Bereich Kernchemie, ZfK-393, 1979, p.61.

Рукопись поступила в издательский отдел
12 марта 1981 года.