

А. Е. Вальков, Л. В. Михайлов

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОПТИМАЛЬНЫХ УСЛОВИЙ ПОЛУЧЕНИЯ ИЗОТОПА ^{82}Sr НА ЦИКЛОТРОНЕ У-240

Проведен анализ различных ядерных реакций образования радионуклида ^{82}Sr и выбран оптимальный процесс получения этого изотопа на циклотроне У-240. Определен диапазон энергий пучка протонов, поглощаемый в соли RbCl , при котором минимизировано образование загрязняющих изотопов. Выбрана оптимальная толщина мишени.

Ключевые слова: изохронный циклотрон, радионуклид, мишень, ядерные реакции.

Введение

Сегодня изотоп ^{82}Rb является одним из самых перспективных позитронных эмиттеров, используемых в позитронной томографии в области кардиологии. Этот радиоизотоп имеет период полураспада 1,273 мин. Благодаря малому периоду полураспада применение ^{82}Rb в медицине позволяет существенно снизить радиационные дозы, получаемые пациентами и персоналом. ^{82}Rb получается из генераторной системы распадом родительского радиоизотопа ^{82}Sr , который распадается чисто электронным захватом в ^{82}Rb . Для практического производства ^{82}Rb важным является не только величина выхода ^{82}Sr в процессе облучения, но и радионуклидная чистота очищенного раствора, используемого для зарядки генератора. Стронций-82 может быть получен с использованием нескольких реакций (табл. 1).

Таблица 1. Методы получения ^{82}Sr

Реакция	Материал мишени	Диапазон энергий, МэВ
$\text{Mo}(p, \text{spallation})$	металлический Mo	500 - 700
$\text{Rb}(p, xn)$	RbCl или металлический Rb	40 - 90
$\text{Kr}(\alpha, pxn)$	Kr, газ	20 - 120
$\text{Kr}(^3\text{He}, xn)$	Kr, газ	20 - 90

Процесс расщепления молибдена требует применения ускорителя с высокой энергией протонного пучка. В работах по получению ^{82}Sr на Лос-Аламосской мезонной фабрике использовалось облучение молибдена пучком протонов с энергией 800 МэВ. Измеренный выход ^{82}Sr составлял 3,7 МБк/мкА·ч. Не считая высокой стоимости работы этой установки, другой серьезной проблемой было образование в большом количестве долгоживущих радиоизотопов ^{85}Sr ($T_{1/2} = 64,8$ сут), ^{89}Sr ($T_{1/2} = 50,5$ сут) и ^{90}Sr ($T_{1/2} = 28,5$ сут) в получаемом продукте ^{82}Sr .

Также были проведены исследования параметров другого возможного метода получения ^{82}Sr облучением газовой мишени криптона пучком ^3He или α -частиц. Измерения сечений реакций показали, что в оптимальных для получения ^{82}Sr областях энергий образование ^{83}Sr и ^{85}Sr , загрязняющих конечный продукт, будет большим, чем ^{82}Sr , выход которого очень низкий.

В настоящее время для производства ^{82}Sr в основном используется реакция $^{85}\text{Rb}(p, 4n)$. Для этого необходим ускоритель с энергией протонов 70 - 80 МэВ. В этом случае образование ^{83}Sr будет также большим, но это несущественно, так как этот изотоп распадается практически полностью за неделю ($T_{1/2} = 32,4$ ч), а уровень загрязнения изотопом ^{85}Sr может контролироваться выбором диапазона энергии пучка протонов, поглощаемого в мишени. В связи с большим интересом к использованию радионуклида ^{82}Sr в медицине в различных лабораториях в последние годы был проведен ряд работ по измерению функций возбуждения ядерных реакций протонов на ^{85}Rb и ^{nat}Rb [1 - 5]. Одна из работ представляет результаты на высокообогащенном ^{85}Rb [1], другая – на ^{nat}Rb [2]. Еще несколько работ посвящены исследованию сечений реакций образования изотопов стронция и рубидия при облучении пучком протонов с энергией до 100 МэВ мишени из натурального рубидия. Точное знание функций возбуждения этих процессов является важным для получения необходимой радионуклидной чистоты конечного продукта. Основным загрязняющим нуклидом является ^{85}Sr . В работе [4] были приведены результаты детальных измерений функции возбуждения и интегрального выхода этого нуклида при облучении протонами $^{nat}\text{RbCl}$.

Получение ^{82}Sr на циклотроне У-240 ИЯИ НАН Украины возможно облучением пучком протонов толстой мишени, изготовленной из соли RbCl . Энергия протонов может достигать 70 МэВ и интенсивность внутреннего пучка – 100 мкА.

Для организации производства ^{82}Sr на циклотроне необходимо определить оптимальные условия облучения мишени и ее конструкцию с точки зрения получения максимального выхода ^{82}Sr с наивысшей достигаемой радионуклидной чистотой, эффективного теплосъема для обеспечения надежности облучения. Выход и чистота радионуклида могут контролироваться посредством использования обогащенного материала мишени и выбором диапазона поглощенной энергии пучка. Целью данной работы является определение этих оптимальных условий путем анализа результатов измерений сечений реакций и выхода радиоизотопов, проведенных в различных лабораториях.

Анализ экспериментальных и расчетных данных

Рубидий имеет два стабильных изотопа: ^{85}Rb (72,165 %) и ^{87}Rb (27,835 %). При облучении на циклотроне У-240 толстой мишени из натурального рубидия пучком протонов с энергией 70 МэВ образование ^{82}Sr обусловлено двумя реакциями: $^{85}\text{Rb}(p, 4n)$ и $^{87}\text{Rb}(p, 6n)$. При этом образуется большое количество различных нуклидов. В табл. 2 показан список основных нуклидов, реакции, пороговые значения энергий, виды и характеристики распадов радиоизотопов, образующихся при таком облучении [2].

Таблица 2. Изотопы, получаемые при облучении ^{nat}Rb протонами с энергией 30 - 70 МэВ

Изотоп	Период полураспада	Вид распада, %	E_{γ} , кэВ	I_{γ} , %	Реакции	Порог энергии, МэВ
^{81}Sr	22,3 мин	EC (14) β^+ (86)	188,3 443,3	16,0 18,2	$^{85}\text{Rb}(p, 5n)$	44,2
^{82}Sr	25,55 сут	EC (100)	нет γ		$^{85}\text{Rb}(p, 4n)$ $^{87}\text{Rb}(p, 6n)$	31,5 50,3
^{83m}Sr	5,0 с	IT(100)	259,1	87,5	$^{85}\text{Rb}(p, 3n)$ $^{87}\text{Rb}(p, 5n)$	22,6 41,3
^{83g}Sr	1,35 сут	EC (76) β^+ (24)	381,6 762,7	11,9 30	$^{85}\text{Rb}(p, 3n)$ $^{87}\text{Rb}(p, 5n)$	22,6 41,3
^{85m}Sr	1,13 ч	IT(87)	231,8	84,1	$^{85}\text{Rb}(p, n)$ $^{87}\text{Rb}(p, 3n)$	1,9 20,7
^{85g}Sr	64,84 сут	EC (100)	514,0	99,27	$^{85}\text{Rb}(p, n)$ $^{87}\text{Rb}(p, 3n)$	1,9 20,6
^{87m}Sr	2,8 ч	IT(99,7) EC (0,30)	388,4	82,3	$^{87}\text{Rb}(p, n)$	0,5
^{81m}Rb	30,5 мин	IT(97,8) EC (2,2)	86,2	4,71	$^{85}\text{Rb}(p, p4n)$ $^{87}\text{Rb}(p, p6n)$	39,5
^{81g}Rb	4,58 ч	EC (69) β^+ (31)	190,4 446,3	64,3 23,3	$^{85}\text{Rb}(p, p4n)$ $^{87}\text{Rb}(p, p6n)$ ^{81}Sr decay ^{81m}Rb decay	39,5
^{82m}Rb	6,47 ч	EC (77) β^+ (23)	554,4 619,1 698,4	62,5 38,0 26,4	$^{85}\text{Rb}(p, p3n)$ $^{87}\text{Rb}(p, p5n)$	30,6 49,3
^{82}Rb	1,273 мин	EC (5) β^+ (95)	776,5	13,4	$^{85}\text{Rb}(p, p3n)$ $^{87}\text{Rb}(p, p5n)$ ^{82}Sr decay	30,6 49,3
^{83}Rb	86,2 сут	EC(100)	520,5 529,7 552,7	46 30,2 16,3	$^{85}\text{Rb}(p, p2n)$ $^{87}\text{Rb}(p, p4n)$ ^{83}Sr g-decay	19,5 38,3
^{84m}Rb	20,26 мин	IT(100)	556,1	98,2	$^{85}\text{Rb}(p, pn)$ $^{87}\text{Rb}(p, p3n)$	10,6 29,4
^{84g}Rb	32,87 сут	EC (70) β^+ (26)	881,7	67,9	$^{85}\text{Rb}(p, pn)$ $^{87}\text{Rb}(p, p3n)$ ^{84m}Rb decay	10,6 29,4
^{86m}Rb	1,017 мин	IT(100)	556,1	98,2	$^{87}\text{Rb}(p, pn)$	10,0
^{86g}Rb	18,66 сут	β^+ (99)	1076,7	8,8	$^{87}\text{Rb}(p, pn)$ ^{86m}Rb decay	10,0

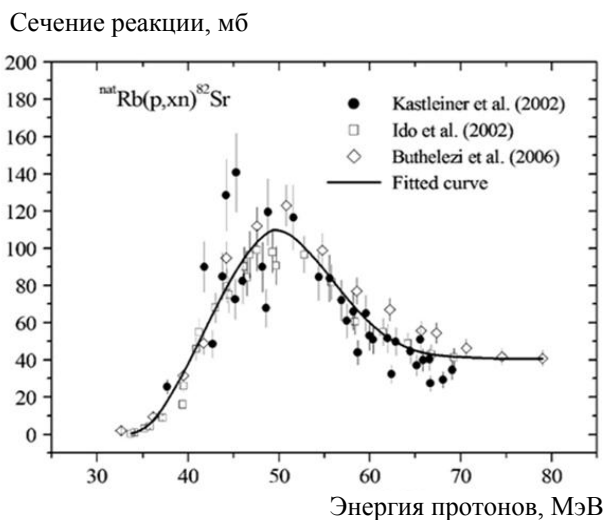


Рис. 1. Функции возбуждения реакции $^{nat}\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$, представленные в работах [1 - 3].

Функции возбуждения для реакции $^{85}\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$, полученные в ранее упомянутых работах [1 - 3], показаны на рис. 1.

Данные, представленные в [2, 3], были получены при исследованиях на натуральном рубидии, а данные [1], полученные на высокообогащенном ^{85}Rb , были нормализованы к натуральному рубидию. Все три набора данных находятся в достаточно хорошем согласии, за исключением диапазона энергий 42 - 45 МэВ. Сплошная линия, усредняющая эти данные, показывает принятую как стандартную функцию возбуждения для процесса $^{nat}\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$.

На рис. 2 показаны функции возбуждения реакций $^{85}\text{Rb}(p, n)^{85}\text{Sr}$ и $^{85}\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$ на высокообогащенном ^{85}Rb , полученные из данных работы [1]. Из приведенных результатов следует, что максимальное значение сечения реакции на натуральном рубидии равно ~ 110 мб, в то время как для обогащенного рубидия эта величина составляет ~ 140 мб. Очевидно, при использовании мишени из высокообогащенного ^{85}Rb выход ^{82}Sr должен быть выше примерно на 25 %, чем для натурального рубидия. Что касается образования ^{82}Sr при реакции $^{87}\text{Rb}(p, 6n)$, то анализ экспериментально измеренных данных сечений реакций (p, n), (p, 2n), (p, 3n), (p, 4n) и (p, 5n) дает приблизительное значение сечения реакции (p, 6n), не превышающее 10 мб, т.е. вклад от реакции на ^{87}Rb очень мал.

В табл. 2 показано, что основными загрязняющими долгоживущими примесями при получении ^{82}Sr на пучке протонов являются радионуклиды ^{83}Sr и ^{85}Sr .

На рис. 3, взятом из работы [3], для сравнения показаны функции возбуждения ^{82}Sr и загрязняющих изотопов ^{83}Sr и ^{85}Sr . Пик для ^{82}Sr наблюдается

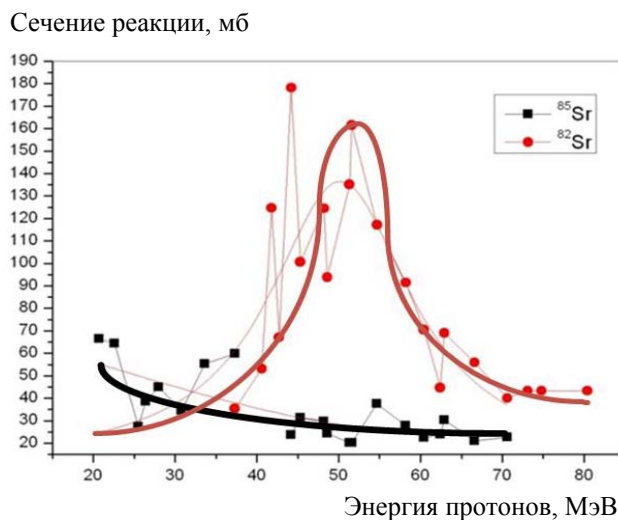


Рис. 2. Функции возбуждения реакций $^{85}\text{Rb}(p, n)^{85}\text{Sr}$ и $^{85}\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$.

в диапазоне энергий от 44 до 70 МэВ. В этом энергетическом диапазоне также существенной является наработка ^{83}Sr . Однако, в виду малого периода полураспада радионуклида ^{83}Sr , это не является серьезной проблемой, так как в течение 10 - 15 сут после окончания облучения активность ^{83}Sr становится пренебрежимо малой. Из рисунка видно, что функция возбуждения для ^{85}Sr резко начинает падать при энергии протонов, большей 44 МэВ.

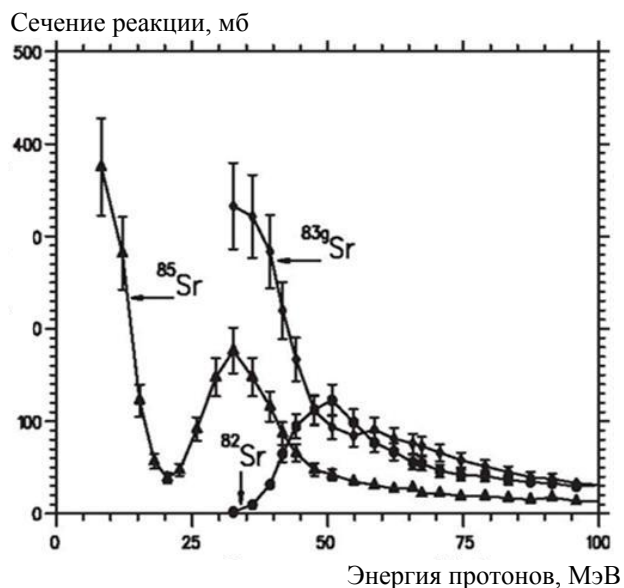
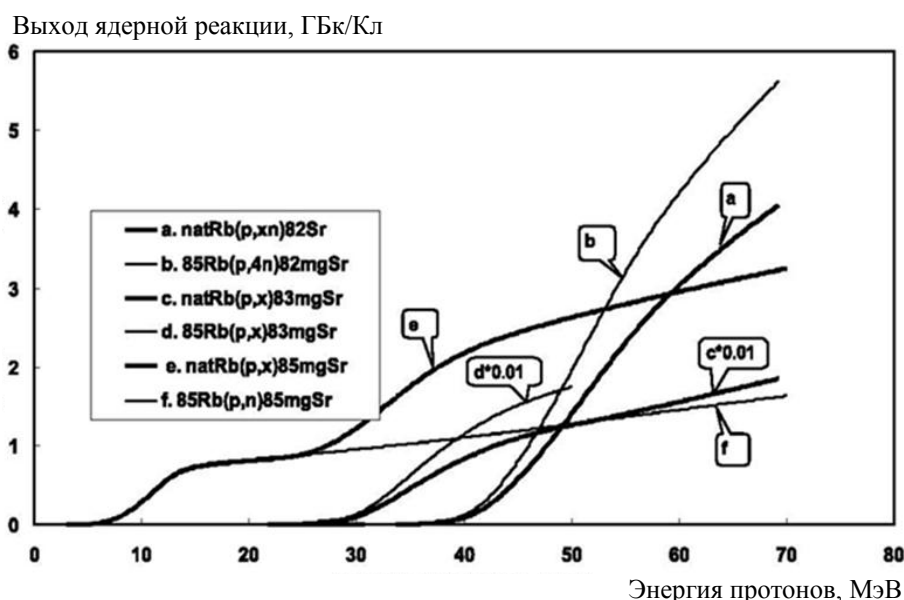


Рис. 3. Функции возбуждения для реакций образования ^{82}Sr , ^{83}Sr и ^{85}Sr [3].

На основании измеренных сечений реакций в работе [2] представлены расчеты интегральных выходов изотопов ^{82}Sr , ^{83}Sr и ^{85}Sr при взаимодействии пучка протонов с энергией 70 МэВ с толстой мишенью из натурального и обогащенного рубидия. Эти результаты расчетов показаны на рис. 4 [2].


 Рис. 4. Интегральные выходы ядерных реакций $^{nat}\text{Rb}(p, xn)^{82,83,85}\text{Sr}$ и $^{85}\text{Rb}(p, xn)^{82,83,85}\text{Sr}$ [2].

Из анализа результатов измерений и расчетов, приведенных в рассматриваемых работах, можно сделать несколько выводов. Во-первых, облучение мишени из обогащенного RbCl дает больший выход по сравнению с мишенью из натурального рубидия (в 1,3 - 1,4 раза). Во-вторых, с ростом энергии протонов выше 60 МэВ выход ^{82}Sr растет практически линейно. В-третьих, ниже 45 МэВ выход реакции $^{85}\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$ существенно мал по сравнению с наработкой ^{85}Sr . Это означает, что если выбрать толщину мишени RbCl такой, чтобы в ней поглощался диапазон энергий протонов 70 - 44 МэВ, то образование изотопов ^{82}Sr будет существенно превышать образование ^{85}Sr и, таким образом, можно обеспечить необходимый уровень радионуклидной чистоты конечного продукта (^{82}Sr). Из этого рисунка также видно, что при использовании в качестве мишени ^{85}Rb выход ^{82}Sr существенно повышается по сравнению с ^{85}Sr .

Выбор оптимальной толщины мишени

Для обеспечения требуемой радионуклидной чистоты ^{82}Sr необходимо минимизировать процесс образования ^{85}Sr . Из предыдущего анализа видно, что достигнуть этой цели можно ограничением поглощаемого в мишени диапазона энергии протонов (75 - 44 МэВ) и применением обогащенного ^{85}Rb . Диапазон поглощаемой энергии определяется толщиной мишени RbCl. В работе [3] приводятся данные экспериментальных исследований по определению количества загрязняющих изотопов стронция ^{83}Sr и ^{85}Sr в конечном продукте ^{82}Sr для поглощенного диапазона энергии протонов (61,5 - 44,1) МэВ при облучении мишени из натурального рубидия. Данные нарабатанной активности радионуклидов, приведенные в табл. 3, рассчитаны для времени облучения 1 ч и тока пучка 1 мкА как функция времени (в сут) после конца облучения (ЕОВ).

Таблица 3. Зависимость распада изотопов стронция от времени

Изотоп	Период полураспада	Активность, МБк					
		ЕОВ	5 сут	10 сут	15 сут	20 сут	25 сут
^{82}Sr	25,5	8,621	7,511	6,549	5,735	4,995	4,366
^{83}Sr	1,35	152,1	11,51	0,895	0,068	0,005	$4 \cdot 10^{-4}$
^{85}Sr	64,8	0,525	0,499	0,473	0,447	0,425	0,403

Из данных таблицы можно сделать следующие выводы:

расчетный выход изотопа ^{82}Sr при облучении мишени из натурального рубидия, поглощающей диапазон энергий (61,5 - 44,1) МэВ, составляет 8,62 МБк/(мкА · ч);

примеси ^{83}Sr не являются проблемой, так как через 15 сут после ЕОВ этот изотоп практически полностью распадается;

удачным выбором толщины мишени можно достичь хорошего соотношения $^{82}\text{Sr}/^{85}\text{Sr}$ (в данном случае толщина мишени 2,23 г/см²).

Повышением верхнего предела поглощенной энергии до 70 - 75 МэВ можно еще увеличить выход ^{82}Sr и улучшить соотношение $^{82}\text{Sr}/^{85}\text{Sr}$. Как было определено выше, при наработке ^{82}Sr на циклотроне У-240 оптимальный диапазон поглощенной энергии составляет 75 - 44 МэВ.

Определим необходимую толщину мишени.

Как известно, при прохождении протонов средних энергий через вещество потери энергии протонов происходят за счет ионизации и возбуждения атомов, рассеяния и различных типов радиационных потерь. В общем случае средние потери энергии определяются тормозной способностью вещества $S(E)$:

$$S(E) = -dE/dx,$$

где E – энергия протона, МэВ; x – пробег. Для определения тормозной способности вещества можно воспользоваться приближенной формулой [6]

$$\frac{-dE}{dx} = \frac{144Zz^2}{AE} \ln\left(\frac{2195E}{I}\right),$$

где z – атомный номер частицы; Z – атомный номер материала мишени; A – атомная масса материала мишени, а. е. м.; E – энергия, МэВ; I – эффективный потенциал ионизации вещества мишени, эВ.

Эффективный потенциал ионизации тормозящего вещества может быть аппроксимирован выражением [6]

$$I = 9,76 Z + 58,8 Z^{-0,019} \quad (\text{для } Z > 13).$$

Пробег заряженной частицы R в веществе, на котором энергия частицы уменьшается от энергии E_{\max} до энергии E_{\min} , определяется интегралом функции энергетических потерь

$$R = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \frac{1}{S(E)} dE,$$

где E_{\min} и E_{\max} – пределы диапазона энергии потерь в материале мишени; $S(E)$ – тормозная способность вещества. Для протонов в указанном энергетическом диапазоне интеграл в этом выражении можно проинтегрировать численно

$$R = \sum_{E_{\min}}^{E_{\max}} \frac{1}{S(E)} \Delta E.$$

Атомный номер природного рубидия равняется 85,47, а природного хлора 35,45. В соответствии с этим тормозную способность соли RbCl

(тормозная способность компаунда (химического соединения, сплава) определяется тормозной способностью каждого элемента компаунда, умноженной на атомную часть элемента в компаунде) можно представить в виде

$$S_{RbCl}(E) = [85,47S_{Rb}(E) + 35,453S_{Cl}(E)] / 120,92.$$

Тогда пробег протонов, теряющих энергию от E_{\max} до E_{\min} в соли RbCl (в единицах поверхностной плотности г/см²), определяется

$$R = 0,84 \sum_{E_{\min}}^{E_{\max}} [85,47 \frac{Z_{Rb}}{A_{Rb}} \ln \frac{2195 E}{I_{Rb}} + 35,45 \frac{Z_{Cl}}{A_{Cl}} \ln \frac{2195 E}{I_{Cl}}]^{-1} E \Delta E.$$

Используя эту формулу для интервала энергий от $E_{\min} = 44$ МэВ до $E_{\max} = 75$ МэВ можно рассчитать, что толщина мишени RbCl должна быть 39,76 г/см² или, учитывая удельную плотность соли 2,8 г/см³, линейная толщина будет 14,2 мм. Если использовать неподвижную мишень, для облучения которой угол между осью пучка и плоскостью мишени должен составлять 8°, то толщина слоя соли RbCl должна быть 2 мм. Для вращающейся мишени, на которую пучок падает перпендикулярно, толщина слоя соли в мишени будет 14 - 15 мм.

Заключение

Так как изохронный циклотрон У-240 способен ускорять протоны до энергии 75 МэВ, то для наработки радионуклида ⁸²Sr будет использована ядерная реакция ^{nat}Rb(p, 4n)⁸²Sr, которая имеет максимальный интегральный выход в этом диапазоне энергий. В качестве облучаемого вещества будет использована соль RbCl. Важнейшим свойством конечного продукта является его изотопная чистота. Основными загрязнителями являются изотопы ⁸³Sr и ⁸⁵Sr. Используя различия в значениях энергии для максимальных сечений реакций образования всех изотопов стронция и величины периода полураспада, был выбран диапазон потерь энергии протонов в материале мишени. Для наших условий он составил 44 - 75 МэВ. В соответствии с этими энергетическими потерями были определены необходимые параметры мишеней.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kastleiner S., Qaim S.M. et al.* Excitation functions of ⁸⁵Rb(p, xn)^{85m,g,83,82,81}Sr reactions up to 100 MeV: integral tests of cross section data, comparison of production routes of ⁸³Sr and thick target yield of ⁸²Sr // *Appl. Radiat. Isot.* - 2002. - Vol. 56. - P. 685.
2. *Ido T., Hermanne A. et al.* Excitation functions of proton induced nuclear reactions on ^{nat}Rb from 30 to 70 MeV. Implication for the production of ⁸²Sr and other medically important Rb and Sr radioisotopes // *Nucl. Instr. Meth.* - 2002. - Vol. B194. - P. 369.

3. *Buthelezi E.Z., Nortier F.M., Schroeder I.W.*. Excitation functions for the production of ^{82}Sr by proton bombardment of ^{nat}Rb at energies up to 100 MeV // *Appl. Radiat. Isot.* - 2006. - Vol. 64. - P. 915.
4. *Qaim S.M., Steyn G.F. et al.* Yield and purity of ^{82}Sr produced via the $^{nat}\text{Rb}(p, xn)^{82}\text{Sr}$ process // *Appl. Radiat. Isot.* - 2007. - Vol. 65. - P. 247.
5. *Mausner L.F., Prach T., Srivastava S.C.* Production of ^{82}Sr by Proton Irradiation of RbCl // *Appl. Radiat. Isot.* - 1987. - Vol. 38. - P. 181.
6. *Technical reports series No. 465.* Cyclotron produced radionuclides: principles and practice.

О. С. Вальков, Л. В. Михайлов

Институт ядерних досліджень НАН України, Київ

ВИЗНАЧЕННЯ ОПТИМАЛЬНИХ УМОВ ОТРИМАННЯ ІЗОТОПУ ^{82}Sr НА ЦИКЛОТРОНІ У-240

Проведено аналіз різних ядерних реакцій утворення радіонукліда ^{82}Sr та вибрано оптимальний процес отримання цього ізотопу на циклотроні У-240. Визначено діапазон енергій пучка протонів, що поглинається в солі RbCl, при якому мінімізовано утворення забруднюючих ізоотопів. Обрана оптимальна товщина мішені.

Ключові слова: ізохронний циклотрон, радіонуклід, мішень, ядерні реакції.

O. E. Valkov, L. V. Mikhailov

DEFINITION OF THE OPTIMAL TERMS OF ISOTOPE ^{82}Sr OBTAINING ON CYCLOTRON U-240

Analysis of the various nuclear reactions for the production of radionuclide ^{82}Sr was performed and optimum process for the production of this radionuclide was determined. Proton beam energy range for minimizing ^{85}Sr impurity was also determined. The thickness of the RbCl target was calculated.

Keywords: isochronous cyclotron, radionuclide, target, nuclear reactions.

Надійшла 21.03.2014
Received 21.03.2014