

К ВОПРОСУ НАРАБОТКИ ^{99m}Tc НА НЕЙТРОННОМ ГЕНЕРАТОРЕ

А.Н. Довбня¹⁾, Э.Л. Купленников¹⁾, В.А.Цымбал¹⁾,
В.В.Красильников²⁾

¹⁾ННЦ ХФТИ, Харьков, 61108, Украина, e-mail: kupl@kipt.kharkov.ua

²⁾Белгородский государственный университет, ул. Победы 85, Белгород, 308015, Россия

Рассмотрена возможность применения нейтронного генератора (НГ) с потоком тепловых нейтронов интенсивности $10^{12}\text{н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ для получения изотопа ^{99m}Tc на основе ядерной реакции $^{98}\text{Mo}(n\gamma)^{99}\text{Mo}\rightarrow^{99m}\text{Tc}$.

Ключевые слова: генератор нейтронов, тепловые нейтроны, поперечное сечение, молибден, технеций, ядерная медицина.

1. Введение

Среди изотопов, применяемых в ядерной медицине, большая роль отводится генераторным нуклидам. Генераторные нуклиды – это система двух связанных между собой радионуклидов (РН), один из которых – более короткоживущий (дочерний) – постоянно образуется в результате распада другого (материнского), имеющего существенно больший период полураспада ($T_{1/2}$). Среди радиоизотопных генераторов наибольшее применение в ядерной медицине имеет генератор $^{99}\text{Mo}\rightarrow^{99m}\text{Tc}$.

Одним из возможных путей получения ^{99}Mo является ядерная реакция $^{98}\text{Mo}(n\gamma)^{99}\text{Mo}$. Образующийся при облучении изотоп ^{99}Mo испускает β -частицы (100%) с максимальной энергией 1210 кэВ и основные γ -кванты с энергией 181.1 и 739.4 кэВ (интенсивность γ -линии $I_\gamma = 6.08\%$, 12.1% соответственно). В результате β -распада ^{99}Mo ($t_{1/2} = 65.9$ ч.) превращается в ^{99m}Tc ($t_{1/2} = 6.02$ ч.), который испускает фотоны, основная энергия которого равна 140.5 кэВ ($I_\gamma = 87.7\%$).

Настоящая работа посвящена количественной оценке наработки ^{99m}Tc на создаваемом в ННЦ ХФТИ малогабаритном НГ с интенсивностью потока тепловых нейтронов $10^{12}\text{н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$.

2. Нарботка ^{99}Mo В(n, γ) реакции

Одним из важных параметров, характеризующих прохождение нейтронов через реальные образцы, является макроскопическое сечение [1] $\Sigma = \rho \cdot \sigma_{eff} \text{см}^{-1}$, где ρ – плотность ядер элемента, σ_{eff} – эффективное сечение взаимодействия. Величина Σ аналогична линейному коэффициенту ослабления γ -квантов и может быть использована для оценки ослабления потока нейтронов при взаимодействии с ядерной средой образца.

Интенсивность потока нейтронов, прошедших слой вещества x без учета вклада многократного рассеяния, равна

$$I(x) = I_0 e^{-\Sigma_t x}, \quad (1)$$

где I_0 – интенсивность первоначального пучка нейтронов, Σ_t – полное макроскопическое сечение, характеризующее всю совокупность процессов взаимодействия нейтронов с веществом.

Толщина мишени, полученная согласно (1), оказалась равной $x = 0.216$ см. Расчет выполнен со следующими параметрами: плотность молибдена естественного изотопного состава (^{Nat}Mo) 10.2 г/см^3 ; полное сечение взаимодействия $\sigma_t = 7.22$ барна, что соответствует среднему значению энергии тепловых нейтронов 0.038 эВ при температуре $T=300^\circ\text{K}$; $\Sigma_t = 0.462 \text{ см}^{-1}$; уменьшение потока нейтронов на задней стенке образца 10% .

Количество ядер ^{98}Mo , содержащихся в мишени, рассчитано согласно выражению

$$N = \beta m \frac{6.02 \cdot 10^{23}}{A}, \quad (2)$$

где $\beta = 24.13\%$ – содержание изотопа ^{98}Mo в натуральном молибдене; $m = 43.25$ г – вес мишени (диаметр образца 5 см выбран исходя из среднего размера пробы, которая обычно используется в активационном анализе на тепловых нейтронах); $A = 98$ – массовое число. В данном случае N равно $6.41 \cdot 10^{22}$ ядер.

Для вычисления активности A_M изотопа ^{99}Mo , накопившегося в пробе за время облучения t_{irr} , использовалась формула [2]

$$A_M = \sigma I_0 N (1 - e^{-\lambda_M t_{irr}}), \quad (3)$$

где $I_0 = 0.95 \cdot 10^{12} \text{ н/см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ – средняя величина потока нейтронов в облучаемой пробе; $\lambda_M = 0.693/T_{1/2} = 2.92 \cdot 10^{-6} \text{ с}^{-1}$ – постоянная радиоактивного распада ^{99}Mo ; $\sigma = 0.13$ барн – сечение реакции на тепловых нейтронах. В [2]

подчеркивается, что поскольку сечение реакции зависит от энергии, в формулу (3) нужно подставлять среднее значение сечения реакции в изучаемом энергетическом интервале.

Оценки проведены для двух времен облучения $t_{irr}^{(24)} = 24$ и $t_{irr}^{(66)} = 66$ часов. При указанных выше параметрах облучения активность наработанного ^{99}Mo равна $A_M^{(24)} = 17.6 \cdot 10^8$ Бк и $A_M^{(66)} = 0.4 \cdot 10^{10}$ Бк, а удельная активность $4.07 \cdot 10^7$ Бк/г и $9.2 \cdot 10^7$ Бк/г соответственно.

В работе [3] отмечено, что в случае облучения образца эпитеpmальными нейтронами реактора с энергией более 0.4 эВ сечение увеличивается до 11.6 барн. Вследствие этого выбор места облучения в активной зоне реактора может существенно повысить активацию ^{98}Mo . В большинстве случаев эффективное сечение составляет около 0.5 барн. В некоторых реакторах удается реализовать эффективное сечение, равное 0.8 барн. По-видимому, облучение образцов нейтронами энергией более 0.4 эВ можно технически осуществить и на НГ.

Интересно сравнить этот результат с данными других авторов, например, [3,4]. В работе [3] показано, что при облучении молибдена в потоке реакторных нейтронов $10^{15} \text{ n} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ в течение 5 суток удельная активность ^{99}Mo может достигать 14.5 Ки/г для природного Mo. Проведенные нами расчеты удельной активности данных [3] по вышеописанной методике с эффективным сечением 0.5 барн [3] дали практически ту же величину. Полученный результат указывает на то, что методика оценки выхода ^{99}Mo достаточно корректна и может быть использована для прогнозирования выхода других РН.

В [4] представлены результаты вычислений активности ^{99}Mo в $^{100}\text{Mo}(n\gamma)^{99}\text{Mo}$ реакции. По оценкам авторов: "приемлемая толщина образцов из ^{Nat}Mo может составлять до 15 г/см^2 ($\leq 1.47 \text{ см}$), а мощность электронного пучка до 20 кВт. В этом случае наработка ^{99}Mo на мишени толщиной 15 г/см^2 , за время 66 часов будет составлять 0.8 Ки". Наши оценки активности ^{99}Mo в реакции $^{98}\text{Mo}(n\gamma)^{99}\text{Mo}$ при той же экспозиции ~ 0.1 Ки.

3. Выход ^{99m}Tc . Обсуждение результатов

Максимальная активность дочернего изотопа, равная активности материнского РН может быть достигнута по истечении времени t_{max} [5]

$$t_{max} = \frac{1}{\lambda_D - \lambda_M} \ln \left(\frac{\lambda_D}{\lambda_M} \right). \quad (4)$$

Подставляя в (4) соответствующие параметры: $\lambda_D = 3.19 \cdot 10^{-5} \text{ с}^{-1}$, $\lambda_M = 2.92 \cdot 10^{-6} \text{ с}^{-1}$, получаем $t_{max} = 22.9$ ч. Подчеркнем, что извлечение ^{99m}Tc из

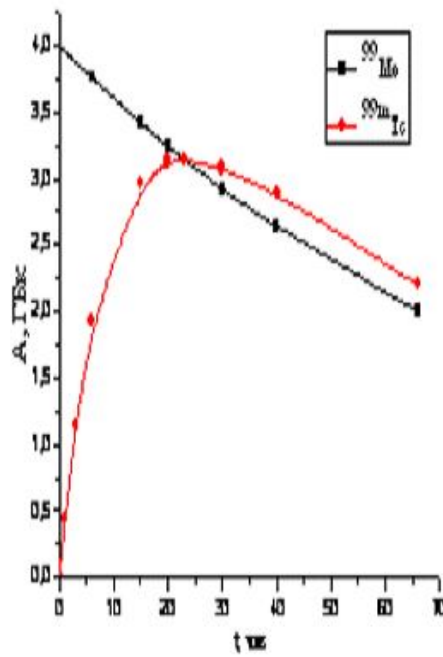


Рис. 1: Зависимость активности.

генератора технеция можно проводить несколько раз в день, не дожидаясь максимального накопления РН, поскольку уже через 6 часов достигается 50% от максимальной активности.

Для любого момента времени t активность дочернего изотопа может быть выражена через активность материнского РН (на тот же момент времени) [5]

$$A_D = A_M \frac{\lambda_D}{\lambda_D - \lambda_M} (1 - e^{-(\lambda_D - \lambda_M)t}), \quad (5)$$

где A_D – активность дочернего вещества в смеси с материнским изотопом или в генераторе в момент времени t , где t – время, прошедшее с начала отсчета до настоящего момента; A_M – начальная активность материнского нуклида в момент зарядки генератора или в момент начала отсчета времени.

Отметим, что при условии $\lambda_D \gg \lambda_M$ выражение (5) несколько упрощается [6]

$$A_D = A_M (1 - e^{-\lambda_D t}). \quad (6)$$

В данном случае $\lambda_D/\lambda_M \sim 10.9$, т.е. условие $\lambda_D \gg \lambda_M$ выполняется не в полной мере, что в итоге отражается на конечном результате дочерней активно-

сти. В связи со сказанным для оценки величины A_D использована формула (5).

Распад материнского вещества и нарастание дочерней активности в первоначально чистой материнской фракции в зависимости от времени приведены на рис.1. Увеличение активности дочернего изотопа с течением времени при начальной активности его равной нулю рассчитывалось по формуле [5]

$$A_D = A_M \frac{\lambda_D}{\lambda_D - \lambda_M} [e^{-\lambda_M t} - e^{-\lambda_D t}]. \quad (7)$$

Подставляя в (5) следующие параметры: $t = 24$ часа, $A_M^{(24)} = 17.6 \cdot 10^8$ и $t = 66$ часов, $A_M^{(66)} \sim 0.4 \cdot 10^{10}$ Бк – и учитывая, что только 82.4% ^{99}Mo трансформируется в ^{99m}Tc [5], а интенсивность γ линии ^{99m}Tc , которая соответствует излучению фотона энергией 140.5 кэВ – 87.7%, получаем $A_D^{(24)} = 12.84 \cdot 10^8$ и $A_D^{(66)} = 31.80 \cdot 10^8$ Бк соответственно.

Ясно, что в реальных условиях получения ^{99m}Tc его активность будет несколько меньше, чем в нашем идеальном случае, поскольку эффективность выделения радиоизотопа в генераторе технеция меньше единицы.

Для однократной диагностики систем жизнедеятельности человека требуется определенная активность радиоизотопа ^{99m}Tc [7]. Например, для исследования сердечно-сосудистой системы нужна активность ~ 55 МБк, для диагностики центральной нервной системы ~ 240 МБк, для скенограммы опухоли головного мозга ~ 370 МБк и т. д. (Кстати, по оценкам экспертов МАГАТЭ, средняя диагностическая доза 10 мКи). Таким образом, наработанная за 24 и 66 часов активность ^{99m}Tc достаточна при обследовании сердечно-сосудистой системы (скенограммы опухоли головного мозга) для $A_D^{(24)}$ в среднем у 23 и 4 пациентов и для $A_D^{(66)}$ у 58 и 9 больных соответственно.

Увеличить выход ^{99}Mo , генерирующего ^{99m}Tc , можно: 1) максимум в 4.1 раза при использовании обогащенной мишени, содержащей только изотоп ^{98}Mo ; 2) почти в 2 раза при возрастании толщины мишени до 4.8 мм, что соответствует 20% уменьшению потока нейтронов на задней стенке образца; 3) путем увеличения экспозиции $t_{irr} \geq T_{1/2}$; 4) в случае одновременного облучения более одной мишени, что предусмотрено конструкцией НГ.

3. Выводы

Рассмотрена возможность применения малогабаритного нейтронного генератора, обладающего интенсивностью потока тепловых нейтронов 10^{12} н-

см⁻²с⁻¹ для получения ^{99m}Tc на основе ядерной реакции ⁹⁸Mo(nγ)⁹⁹Mo. Показано, что НГ может, в принципе, производить радиоизотоп ^{99m}Tc с активностью, достаточной для применения в ядерной медицине.

Работа поддержана грантом УНТЦ № Р333.

Литература

1. Блан Д. Ядра, частицы, ядерные реакторы / Д.Блан – М.: Мир,1989. – 335 с.
2. Немец О.Ф. Справочник по ядерной физике / О.Ф.Немец, Ю.В.Гофман Ю.В. – Киев: Наукова Думка,1975. – 415 с.
3. Веревкин А.А., Стервиедов Н.Г., Ковтун Г.П. // Вестник ХНУ. Серия: Ядра, частицы, поля. – 2006. - 745; 4(32). – С.54-64.
4. Довбня А.Н., Пугачев Г.Д., Пугачев Д.Г. и др., Получение мощных фотонных пучков для наработки медицинских радионуклидов // ВАНТ. Серия: яд.-физ. исследования. – 1997. – 4,5(31,32). – С.154-156.
5. Соколов В.А., Генераторы короткоживущих радиоактивных изотопов / В.А.Соколов. – М.: Атомиздат,1975. – 113 с.
6. Баранов В.Ю., Изотопы II / В.Ю. Баранов. – М.:Физматлит, 2005. – 727 с.
7. П.А. Демченко П.А., Воронко В.А., Мигаленя В.Я. и др. // ВАНТ. Серия: яд.-физ.исследования. – 1997. – 4,5(31,32). – С.168-170.

TO THE PROBLEM OF ^{99m}Tc YIELD IN REACTION ⁹⁸Mo(nγ)⁹⁹Mo → ^{99m}Tc

A.N. Dovbnya¹), E.L. Kuplennikov¹), V.A. Tsybal¹), V.V. Krasil'nikov²)

¹)National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology",
Akademicheskaya st., Kharkov, 61108, Ukraine, e-mail: kupl@kipt.kharkov.ua

²)Belgorod State University, Belgorod, Russia

Possibility of the neutron generator with intensity flow of thermal neutrons 10¹²n·cm⁻²·s⁻¹ application for ^{99m}Tc production on the base of ⁹⁸Mo(nγ)⁹⁹Mo → ^{99m}Tc nuclear reaction is considered.

Key words: neutron generator, thermal neutrons, cross-section, molybdenum, technetium, nuclear medicine.