РАЗРАБОТКА МЕТОДИКИ КОНТРОЛЯ РАДИОФАРМПРЕПАРАТОВ

Е. А. Маренкова¹, М. С. Кузнецов¹, Н. Р. Неволин¹, В. В. Сохорева¹, С. А. Пластун¹, А. М. Большаков¹, М. С. Черепнёв¹, А. С. Семенов², В. М. Малютин¹, В. В. Зукау¹, Д. В. Кабанов¹, Ф. А. Ворошилов¹, А. Б. Капитонов¹, И. В. Безденежных¹

¹Томский политехнический университет
Томск, Россия, eam33@tpu.ru, kms@tpu.ru, nrn5@tpu.ru, sokhoreva@tpu.ru,
kamikaze@tpu.ru, bolshakov@tpu.ru, maxcherepnev@tpu.ru, mvm@tpu.ru; zukau@tpu.ru,
kabanovdv@tpu.ru, fvoroshilov@tpu.ru, abk14@tpu.ru, biv_spm@mail.ru

²AO «ТомскНИПИнефть»
Томск, Россия, semenovas@tpu.ru

DEVELOPMENT OF A METHOD FOR CONTROL OF RADIOPHARMACEUTICALS

E. A. Marenkova¹, M. S. Kuznetsov¹, N. R. Nevolin¹, V. V. Sokhorev¹, S. A. Plastun¹, A. M. Bolshakov¹, M. S. Cherepnev¹, A. S. Semenov², V. M. Malyutin¹, V. V. Zukau¹, D. V. Kabanov¹, F. A. Voroshilov¹, A. B. Kapitonov¹, I. V. Bezdenezhnykh¹

¹TOMSKY Polytechnic University

Tomsk, Russia, eam33@tpu.ru, kms@tpu.ru, nrn5@tpu.ru, sokhoreva@tpu.ru, kamikaze@tpu.ru, bolshakov@tpu.ru, maxcherepnev@tpu.ru, mvm@tpu.ru, zukau@tpu.ru, kabanovdv@tpu.ru, fvoroshilov@tpu.ru, abk14@tpu.ru, biv_spm@mail.ru

2AO TomskNIPIneft

Tomsk, Russia, semenovas@tpu.ru

The aim of the study is to draw up a method for monitoring the isotopic composition of medical solutions of radium-223. The possibility of using gamma spectrometry for control of radium-223, its decay products, and its parent isotopes are considered in the work. Gamma-spectrometric analysis of four samples based on radium-223 was performed

Введение

Широкое применение в настоящее время имеет радионуклидная терапия. Выбор радиофармпрепаратов осуществляется по определенным параметрам, среди которых линейная передача энергии, период полураспада, удельная активность и так далее. Одним из перспективных изотопов для применения в медицинских целях является изотоп радия-223. Радий-223 и его короткоживущие продукты распада испускают последовательно 4 высокоэнергетические альфа-частицы; порядка 93 % образующейся при распадах энергии принадлежит альфаизлучению. Существующий генераторный способ его получения из актиния-227 в настоящее время не удовлетворяет растущий спрос на данный радионуклид из-за чего разрабатываются новые методы получения изотопа радия. Важной задачей контроля качества произведенных радиофармпрепаратов является определение радионуклидной чистоты. Одним из неразрушающих методов контроля изотопного состава медицинских образцов может быть гамма-спектрометрия.

Материалы и методы

В работе рассмотрен качественный анализ четырех образцов на основе радия-223, отличающихся удельной активностью на дату измерения. Измере-

ния проведены на коаксиальном германиевом детекторе Canberra GC1518; анализ спектров выполнен с помощью программного обеспечения Genie-2000. Эксперимент содержит две серии измерений в разное время: 09.12.2020 и 18.12.2020. Живое время набора спектра — 15 минут. Параметры процедур анализа спектров гамма-излучения: допуск при поиске пиков 3 кэВ, пороговый уровень значимости при поиске пиков 2 %.

Результаты и их обсуждение

Практически все рассматриваемые изотопы могут быть идентифицированы посредством гамма-спектрометрического анализа. Первым этапом анализа является идентификация линий, принадлежащих изотопу радия-223 и его продуктам распада. В результате идентификации пиков набранных спектров по библиотеке, содержащей линии гамма-излучения только радия-223 и его продуктов распада, не все пики в спектрах идентифицированы, что свидетельствует о возможном присутствии в растворах примесей.

Для определения возможных примесей в работе рассмотрены методы получения изотопа радия-223: облучение мишеней из природного тория ускоренными протонами [1] и облучение мишеней из радия-226 тепловыми нейтронами [2]. Из облученных

мишеней выделяется изотоп актиния-227, который является генератором радия-223. Схема накопления радия-223:

²²⁷Ac (β 98,9 %) \rightarrow ²²⁷Th (α 100 %) \rightarrow ²²³Ra.

На состав готового медицинского раствора влияют вид и способ получения мишени, способ накопления изотопа, этап выдержки облученных мишеней, способ выделения изотопа. Однако в большинстве случаев основными примесными изотопами, наличие которых возможно в радиофармпрепарате на основе радия-223, будут являться изотопы радия (радий-224, радий-225, радий-226, радий-228), соответствующие изотопы актиния, продукты распада.

Барий является химическим аналогом радия, изза чего в растворах после выделения целевого изотопа возможно присутствие микроколичеств изотопа бария-140, образуемого при делении изотопов тория. Основной линией бария-140 является 537,26 кэВ (24,39%). Данная линия в набранных спектрах не идентифицирована. Отсутствие бария-140 в растворе может свидетельствовать с большей вероятностью о накоплении радия-223 из выделенного актиния-227.

Таким образом, в первую очередь выдвинуто предположение о присутствии в исследуемых образцах материнских изотопов актиния и тория. Актиний-227 характеризуется низкой интенсивностью (менее 1%) гамма-излучения, что в совокупности с его низкой концентрацией делает невозможным применение гамма-спектрометрии для его прямого контроля. Торий-227 обладает достаточно интенсивной линией гамма-излучений 236 кэВ (12,9%); однако для регистрации низких концентраций по рассматриваемой линии необходимо значительное увеличение живого времени набора спектра, что может быть осложнено уже высокой величиной времени набора спектра из-за увеличения мертвого времени, что связано с высокой начальной активностью препарата. Определение тория-227 по рентгеновскому излучению малоэффективно: пики рентгеновского излучения расположены в низкоэнергетическом диапазоне (11-19 кэВ), плохо разделимы и практически перекрываются рентгеновским излучением целевого изотопа радия (10–18 кэВ). Мерой контроля материнских для целевого радия изотопа актиния и тория может являться отслеживание изменения количества радия в пробе с течением времени и сравнение с аналитическими расчетами изменения количества радиоизотопа. В период с 09.12.2020 по 18.12.2020 активность радия-223 уменьшилась в 1,6275 раза. Теоретическое изменение активности за рассматриваемый период времени между измерениями составляет 1,7284 раза. Таким образом, можно сделать вывод, что теоретическое уменьшение активности превышает практическое, а значит возможна генерация изотопа радия из примесных материнских изотопов тория-227 и актиния-227. На возможное присутствие в пробе тория-227 указывает наличие его основных гамма-линий в спектре: 235,97 кэВ (12,3%), 256,25 кэВ (7,0%), 329,85 кэВ (2,7%). Однозначно установить содержание тория в пробе по данным пикам невозможно, так как вклад в пик 256,25 кэВ дает линя целевого изотопа радия 255,23 (0,052%), в 235,97 кэВ — 236,07 кэВ (0,010%), в 329,85 кэВ — 328,40 кэВ (0,206%).

В спектре отмечена линия 84 кэВ, которая может быть как линией рентгеновского излучения радия-223 (83,8 кэВ - 25,1%), так и линией гамма-излучения тория-228. Присутствие тория-228 в рассматриваемых пробах может быть объяснено этапами разделения продуктов облучения. Достоверность идентификации тория-228, рассчитанная программой, достаточно высока (более 0,658), особенно для проб с большей активностью, однако не является гарантом наличия этого изотопа в исследуемых растворах, так как спектр гамма-излучения тория-228 представлен только низкоинтенсивными линиями, максимальная интенсивность характерна для указанной ранее линии 84 кэВ 1,2 %. Из-за возможного наличия тория-228 в пробе в библиотеку для идентификации пиков добавлены продукты его радиоактивного распада. Достоверность идентификации продуктов распада тория-228 достаточно высока: для радия-224 достоверность составляет более 0,979, висмут и свинец идентифицированы не во всех пробах, что может быть объяснено набором низкой статистки из-за малого содержания в исследуемых образцах.

На основании экспериментальных измерений препаратов радия определен план измерений и анализа спектров гамма-излучения для определения изотопной чистоты растворов:

- анализ спектров по библиотеке, содержащей только целевой радий и его продукты распада, определение неидентифицированных пиков;
- проверка неидентифицированных пиков как пики суммирования;
- проверка линии 537,26 кэВ (24,39 %) бария-140;
- анализ спектров по библиотеке, содержащий целевой радий, его материнские и дочерние изотопы, проверка интерферирующих пиков радия-223 и тория-227 по площадям пиков 235,97 кэВ (12,3 %), 256,25 кэВ (7,0 %), 329,85 кэВ (2,7 %);
 - проверка пика 84 кэВ тория-228;
- анализ спектров по библиотеке, содержащей радий, его дочерние изотопы и тория-228 с его продуктами распада;
- проверка возможности присутствия других изотопов тория с его продуктами распада.

Заключение

В рамках работы рассмотрена возможность использования гамма-спектрометрического анализа радиофармпрепаратов на основе радия-223 для контроля присутствия изотопов актиния, тория, радия и их продуктов распада. Для более детального анализа состава образцов и корректировки предложенной методики растворов на основе радия-223 необхо-

димо выполнить дополнительные измерения с калибровкой системы по эффективности в выбранной геометрии.

Литература

1. Васильев А. Н. Получение ²²⁵Ас и ²²³Ra из облученного протонами средних энергий природного тория / Васильев А. Н., Остапенко В. С., Ермолаев С. В., Лапшина Е. В., Калмыков С. Н. // Физикохимия, 2015. — 2015. — С. 90—91.

2. Кузнецов Р. А. Получение альфа-излучающих нуклидов облучением ²²⁶Ra в высокопоточном реакторе см / Кузнецов Р. А., Буткалюк П. С., Буткалюк И. Л., Тарасов В. А., Романов Е. Г., Баранов А. Ю. // Сборник трудов АО ГНЦ НИИАР, 2015. — № 1. — С. 23—30.

МИНЕРАЛЬНО-СЫРЬЕВОЙ ПОТЕНЦИАЛ УРАНА

Г. А. Машковцев¹, А. В. Бойцов², С. В. Полонянкина³, А. В. Тарханов⁴

¹Всероссийский институт минерального сырья, ФГБУ «ВИМС» Москва, Россия, mashkovcev@vims-geo.ru, vims@vims-geo.ru

²AO «Техснабэкспорт»
Москва, Россия, tenex@tenex.ru

³AO «АРМЗ»
Москва, Россия, svpolonyankina@armz.ru, info@armz.ru

⁴AO «ВНИИХТ»
Москва, Россия, tarkhanov.uranium@mail.ru, info@vniiht.ru

URANIUM MINERAL AND RAW POTENTIAL

G. A. Mashkovtsev¹, A. V. Boytsov², S. V. Polonyankina³, A. V. Tarkhanov⁴

¹All-Russian Scientific-Research Institute of Mineral Resources named after N. M. Fedorovsky (FSBI VIMS)

Moscow, Russia, mashkovcev@vims-geo.ru

²JSC "Techsnabexport"

Moscow, Russia, tenex@tenex.ru

³Atomredmetzoloto Uranium Holding Co. (ARMZ JSC)

³Atomredmetzoloto Uranium Holding Co. (ARMZ JSC) Moscow, Russia, svpolonyankina@armz.ru, info@armz.ru ⁴JSC "VNIIHT"

Moscow, Russia, tarkhanov.uranium@mail.ru, info@vniiht.ru

The growth of nuclear power plant capacities predicted for the coming years around the world and in the Russian Federation makes it necessary to increase the production of natural uranium, as well as to intensify uranium exploration aimed at the discovery of new high-quality deposits. In this regard, various aspects of increasing the uranium mineral resource base in Russia and abroad are considered.

Основные тенденции развития мировой урановой промышленности

Всемирная Ядерная Ассоциация в аналитическом отчете по ядерному топливному циклу 2019 года сделала оптимистичные прогнозы по развитию мировой атомной энергетики. Базовый сценарий предполагает, что мощность АЭС во всем мире вырастет с нынешних 370 ГВт до почти 570 ГВт к 2040 году, то есть более чем в полтора раза. Пропорционально должны увеличиться и потребности АЭ в уране с 67 до 100 тыс. тонн в год. Доля вторичных источников снизится более чем в три раза, а основной рост должен быть обеспечен первичной добычей

природного урана, который не имеет альтернативы на этом горизонте. Добыча урана должна увеличиться с нынешних 53 до 92 тыс. тонн к 2040 году, причем на действующих рудниках она сократится на треть, а планируемые новые рудники не смогут компенсировать выбывающие мощности. С 2025 года спрос на уран начнет превышать предложение, и дефицит придется покрывать из так называемых неопределённых источников в объеме до 46 тыс. т к 2040 году.

Несмотря на глобальные вызовы, урановый рынок продолжает лихорадить, а низкие цены на уран никак не отвечают ожиданиям производителей, многие из которых сдерживают или вовсе закрывают добывающие мощности. Спотовые цены на уран в по-