

## ПОЛУЧЕНИЕ $^{131}\text{Cs}$ В ФОТОЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЯХ ДЛЯ МЕДИЦИНСКИХ ИСТОЧНИКОВ

А.В. Белоусов<sup>1</sup>, М.В. Желтоножская<sup>1</sup>, Е.Н. Лыкова<sup>1</sup>,  
П.Д. Ремизов<sup>1</sup>, А.П. Черняев<sup>1</sup>, В.Н. Яценко<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Физический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва

<sup>2</sup> Федеральный медицинский биофизический центр им. А.И. Бурназяна  
ФМБА России, Москва

Исследована возможность создания альтернативного способа наработки радионуклида  $^{131}\text{Cs}$ . С этой целью проведено облучение мишени природного цезия на импульсном разрезном микротроне НИИЯФ МГУ с энергией электронов 55 МэВ, средним током 40–45 нА в течение 80 мин.

В эксперименте при облучении, проведённом на 0,35 г хлорида цезия, получена активность на момент окончания облучения в облученном образце  $^{131}\text{Cs}$ , равная  $12,2 \pm 1,0$  мкКи. Вычислено экспериментальное сечение  $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2n)^{131}\text{Cs}$  реакции  $\sigma(^{131}\text{Cs})=8$  мбн.

Установлено, что для наработки активности, требуемой для введения одному пациенту, необходимо увеличить ток пучка электронов до 50 мкА, либо увеличить время облучения образца. Время облучения на микротроне НИИЯФ МГУ для наработки клинически пригодного источника  $^{131}\text{Cs}$  составит порядка 7 ч.

Ключевые слова: медицинские источники, активация, ускорители электронов, фотоядерные реакции, цезий-131, брахитерапия

### Введение

Интенсивное развитие брахитерапии, которая стала эффективным средством как самостоятельного, так и комбинированного лечения больных, привело к возрастающему числу потребителей и повышению требований к технологиям получения радионуклидов. В последние годы повсеместное признание в лечении рака предстательной железы, одного из наиболее распространённых злокачественных новообразований у мужчин, получил метод брахитерапии с применением  $^{125}\text{I}$  с периодом полураспада 59 сут и энергией фотонного излучения 28,5 кэВ. Однако уже с 2003 г. в США для клинического использования в лечении этого вида рака получили одобрение радиоимплантаты  $^{131}\text{Cs}$ . По результатам исследований пациентов, которым была произведена

имплантация  $^{131}\text{Cs}$ , было получено, что уровень биохимической безрецидивной выживаемости составил 91–97 %, что является хорошим показателем, свидетельствующим о высокой эффективности этого препарата. Средняя энергия излучения  $^{131}\text{Cs}$  составляет 31 кэВ, а период полураспада равен 9,7 сут, поэтому 90 % дозы в опухоли  $^{131}\text{Cs}$  обеспечивает за 30 сут, тогда как  $^{125}\text{I}$  – за 6 мес. Скорость репопуляции раковых клеток простаты составляет 1,5 % в день, т.е. увеличение их количества в два раза происходит за 67 сут. Таким образом, скорость уничтожения раковых клеток при использовании  $^{131}\text{Cs}$  существенно выше скорости их репопуляции [1–5].

Однако, в России этот эффективный медицинский источник до сих пор не нашел клинического применения. Возможным объяснением этого факта является сложность и дорого-

визна его получения традиционным способом в ядерных реакторах. Поэтому в настоящее время достаточно актуальными являются исследования альтернативных технологий получения  $^{131}\text{Cs}$  с помощью ускорителей электронов и оценка эффективности этого метода.

## Обзор современных способов наработки $^{131}\text{Cs}$

Радионуклид  $^{131}\text{Cs}$  имеет довольно небольшое время жизни (9,7 сут), что является его важным преимуществом при медицинском применении, однако создаёт дополнительные сложности при его производстве.

Этот радионуклид распадается через электронный захват, превращаясь в нуклид  $^{131}\text{Xe}$  в стабильном состоянии. Электронный захват сопровождается испусканием характеристического излучения 29,461, 29,782, 33,624 и 34,419 кэВ. Учитывая интенсивности этих линий, а также их взаимное положение в энергетическом спектре, можно упрощённо считать, что распад сопровождается фотонным излучением с энергией 29 и 34 кэВ.

Кроме непосредственной наработки  $^{131}\text{Cs}$ , его также можно получать генераторным методом путем распада  $^{131}\text{Ba}$ . Поэтому зачастую стараются получить сначала радионуклид  $^{131}\text{Ba}$ , который с периодом полураспада 11,8 сут превращается в искомый  $^{131}\text{Cs}$ .

В последние годы используются методы получения  $^{131}\text{Cs}$  и  $^{131}\text{Ba}$  с помощью реакторов и ускорителей. Во всех методах критическую роль играют сопутствующие ядерные реакции, при которых образуются другие радионуклиды, наличие которых не позволяет применять  $^{131}\text{Cs}$  в медицинских целях без проведения дополнительных дорогостоящих радиохимических процедур его выделения.

На сегодняшний день основной, применяющийся в промышленности для получения  $^{131}\text{Cs}$ , реакторный метод основан на реакции  $^{130}\text{Ba}(n,\gamma)^{131}\text{Ba}$  [6].

Для его осуществления природную смесь бария, в состав которой входит 7 стабильных изотопов ( $^{130}\text{Ba}$ ,  $^{132}\text{Ba}$ ,  $^{134}\text{Ba}$ ,  $^{135}\text{Ba}$ ,  $^{136}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Ba}$ ,  $^{138}\text{Ba}$ ), помещают в ядерный реактор. Масса мишени должна быть достаточно большой, так как содержание  $^{130}\text{Ba}$  в природной смеси бария составляет всего 0,1 %. Наряду с природной смесью бария используют мишени, обогащён-

ные  $^{130}\text{Ba}$  для более эффективной наработки  $^{131}\text{Ba}$ . Образующийся  $^{131}\text{Ba}$  с периодом полураспада 11,5 сут посредством электронного захвата превращается в  $^{131}\text{Cs}$ .

Мишени, содержащие около 0,1 г  $^{130}\text{Ba}$ , после недельного облучения дают активность по  $^{131}\text{Cs}$  порядка 10 Ки. Обычно за неделю нарабатывается до нескольких сотен Ки. В качестве мишеней используют соли бария, чаще всего карбонат бария.

Образующийся по мере облучения мишени реакторными нейтронами,  $^{131}\text{Cs}$  также способен захватывать нейтроны, превращаясь в  $^{132}\text{Cs}$ . Этот радионуклид в мягком рентгеновском диапазоне имеет идентичный  $^{131}\text{Cs}$  спектр, однако вместе с этим испускает высокоинтенсивное гамма-излучение с энергией 667 кэВ.

Для выделения цезия из облученной мишени используют радиохимические методы. Облученный барий растворяют в кислоте, а затем, нейтрализуя раствор, осаждают барий обратно в твердое состояние, в виде нерастворимой в воде соли бария. Образующаяся при этом соль цезия водорастворима и отфильтровывается от твердого осадка, содержащего барий. Далее производится тонкая химическая очистка раствора от примесей и выпаривание воды. Указанную процедуру производят по истечении определённого промежутка времени после облучения в реакторе, который обычно составляет от 6 ч до 5 сут. Это необходимо для того, чтобы распалась часть ядер  $^{132}\text{Cs}$ , период полураспада которого меньше по сравнению с  $^{131}\text{Cs}$  и составляет 6,5 сут. Иногда процесс выделения повторяют с периодичностью в несколько дней, что увеличивает долю изотопа  $^{131}\text{Cs}$  в их смеси. Финальная радионуклидная чистота по  $^{131}\text{Cs}$  должна превышать 99,9 %.

По теоретическим расчётам, сечение реакции  $^{nat}\text{Ba}(n,\gamma)^{131}\text{Ba}$  при облучении тепловыми нейтронами составляет 11,3 мбн. После часа облучения нейтронами с плотностью потока  $10^{14}$  нейтр./см<sup>2</sup> 1 г такой мишени обеспечит получение активности 10 МБк/ч. При облучении в тех же условиях 1 г  $^{130}\text{Ba}$  активность составит 10 ГБк/ч. К недостаткам этого метода можно отнести значительное количество радиоактивных отходов, образующихся после выделения  $^{131}\text{Cs}$  из облученных мишеней.

Также ранее был предложен метод наработки  $^{131}\text{Cs}$  по реакции  $^{131}\text{Xe}(p,n)^{131}\text{Cs}$  [7]. Для его реализации облучали капсулы, наполненные газом (ксеноном). Капсулы имели длину 2,5 см и диаметр 2 см и состояли из очищенной нержавеющей стали с 50-нанометровыми алюминиевыми окошками. Внутри они были наполнены газом с чистотой по  $^{131}\text{Xe}$  99,6 % (в природной смеси его содержание 21,2 %) и давлением 0,9 бар. Капсулы облучались циклотронными пучками протонов с силой тока 200 нА и энергией 28, 24, 20, 15 и 12,5 МэВ. Во время облучения интенсивность пучка менялась не более чем на 10 %.

В каждом опыте вместе помещались 5 капсул, и перед каждой из них были установлены титановые фольги толщиной 12 мкм для модуляции интенсивности пучка. Капсулы находились в цилиндрическом держателе, служившим для пучка клеткой Фарадея. Чтобы скорректировать эффективную энергию пучка и расположить экспериментальные точки равномерно по диапазону энергий, в некоторых случаях были дополнительно проложены алюминиевые (52 мкм) и таллиевые (210 мкм) фольги. Авторы, опираясь на свои предыдущие исследования взаимодействия пучков и оболочек капсул, утверждают, что для пучков слабой интенсивности наличие фольг не меняет оптимально флюенс пучка.

Для извлечения цезия облученные капсулы не вскрывались, а помещались в воду при температуре 0° на 1 ч для его осаждения на внутренних стенках. После этого ксенон криогенно выкачивали (при этом с газом терялось 4–5 % атомов цезия). Капсулы после откачки трижды промывались азотной кислотой нормальности 0,5, потом деминерализованной водой. Этот раствор охлаждался, снова добавлялась азотная кислота той же нормальности и растворённым переносчиком для цезия. При помощи NaOH pH поддерживалось на уровне между 1,8 и 2, а температура в течение получения поддерживалась на уровне 0°С. Интенсивно перемешивая раствор, в него добавляли тетрафенил-борат натрия и отстаивали 1 ч. Цезий образовывал осадок, и его отфильтровывали.

По истечении 30 дней после облучения среди образовавшихся радиоизотопов цезия остались только долгоживущие:  $^{132}\text{Cs}$  (6,5 сут),  $^{134}\text{Cs}$  (2 г.),  $^{135}\text{Cs}$  (2,3 млн. лет),  $^{136}\text{Cs}$  (13 сут) и  $^{137}\text{Cs}$  (30 лет). Авторами предложенного метода установлено, что изотопы с большим периодом

полураспада (порядка года и более) вносили ничтожно малый вклад в спектр излучения. Например,  $^{136}\text{Cs}$  появлялся в реакции  $^{136}\text{Xe}(p,n)^{136}\text{Cs}$ , и его вклад излучения в линии  $^{131}\text{Cs}$  составил около 0,4 %. Другим радионуклидом, имеющим соизмеримое с  $^{131}\text{Cs}$  период полураспада, является  $^{132}\text{Cs}$ . В рассматриваемом диапазоне энергий он появлялся в трёх видах реакций:  $^{131}\text{Xe}(p,\gamma)$ ,  $^{132}\text{Xe}(p,n)$  и  $^{134}\text{Xe}(p,3n)$ . Реакция  $^{131}\text{Xe}(p,\gamma)^{132}\text{Cs}$  возможна на 99,6 % ядер мишени, но вклад активности этой реакции в общий фон будет в 2500 раз меньшим, чем от  $^{131}\text{Cs}$ , так как сечение этой реакции очень мало. Авторы оценили вклад двух других реакций тем же способом, что в случае  $^{136}\text{Cs}$ , и установили, что он не превышает 0,4 %.

Таким образом, в результате исследований было получено, что для этого метода оптимальный диапазон энергий протонов для наработки  $^{131}\text{Cs}$  – это энергии от 16 до 17 МэВ, где выход радионуклида составляет 15 МБк/мкА·ч (на 20 МэВ – 17 МБк/мкА·ч). На энергиях свыше 17 МэВ образуется  $^{129}\text{Cs}$  из реакции  $^{131}\text{Xe}(p,3n)^{129}\text{Cs}$ . Сравнение его физического выхода и сечений его образования (экспериментальных данных и теоретических, полученных на основе баз данных Allice-Irpe, Empire, PADF-2007 и TENDL-2008) показано на рис. 1. К недостаткам этого метода можно отнести сложность его реализации в промышленных условиях.

Также известна реакция  $^{127}\text{I}(\alpha,\gamma)^{131}\text{Cs}$ , но максимум сечения этой реакции составляет 0,156 мбн.

Характеристики других известных способов получения  $^{131}\text{Ba}$  в различных реакциях с помощью ускорителей представлены на рис. 2:

Таким образом, к основным недостаткам современных методов получения  $^{131}\text{Cs}$  можно отнести либо сложность реализации в промышленных условиях, либо значительное количество радиоактивных отходов, образующихся после выделения  $^{131}\text{Cs}$  из облученных мишеней.

## Экспериментальные исследования

Для решения этой задачи предлагается получать  $^{131}\text{Cs}$  на ускорителе электронов путем облучения тормозными квантами природного цезия, состоящего из единственного стабильного нуклида  $^{133}\text{Cs}$ . При поглощении фотона яд-

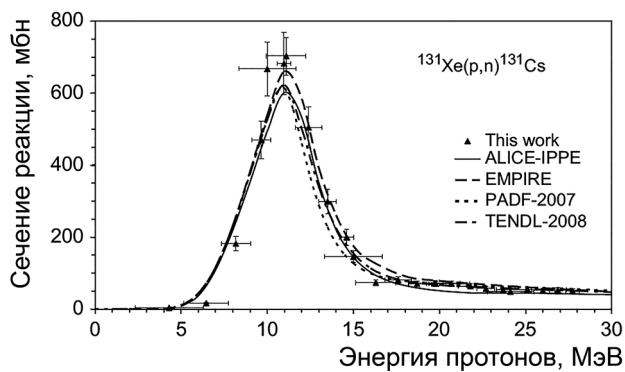


Рис. 1. Кривые активации для получения  $^{131}\text{Cs}$  в реакции  $^{131}\text{Xe}(p,n)^{131}\text{Cs}$  [7]

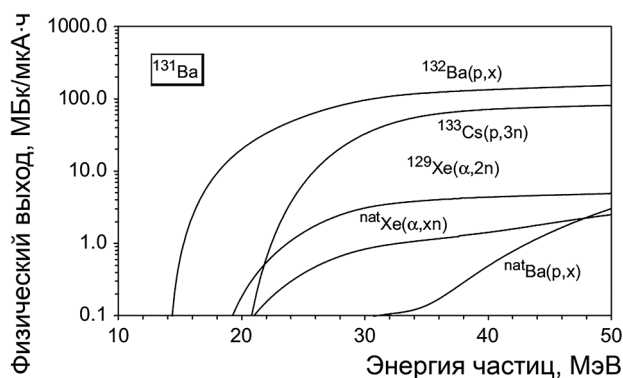


Рис. 2. Изученные реакции получения  $^{131}\text{Ba}$  [7]

ро  $^{133}\text{Cs}$  получает избыток энергии без изменения своего нуклонного состава и становится составным ядром, а так как переданная ядру энергия будет превосходить энергию связи нуклона в ядре, то распад образовавшегося составного ядра будет происходить с испусканием нейтрона, и по реакции  $(\gamma, n)$  будет образовываться  $^{132}\text{Cs}$  с периодом полураспада 6,5 сут. В свою очередь, по реакции  $(\gamma, 2n)$  будет образовываться  $^{131}\text{Cs}$  с периодом полураспада 9,7 сут.

Облучение мишени из природного цезия проводилось на импульсном разрезном микротроне НИИЯФ МГУ (рис. 3). Его характеристики приведены в табл. 1.

В нашем эксперименте на выходе из микротрона пучок электронов имел энергию 55 МэВ, средний ток 40–45 нА и поперечные размеры  $8 \times 2$  мм. В качестве тормозной мишени использовали вольфрамовую пластину толщиной 2,1 мм.

Тормозное излучение для электронов энергии 55 МэВ узко направлено в первоначальном направлении пучка: средний угол вылета тормозных фотонов составляет:

$$\langle \theta \rangle = \frac{m_e c^2}{E} \approx 9,3 \cdot 10^{-3}.$$

Поэтому облучаемая мишень располагалась непосредственно за тормозной мишенью на оси пучка электронов. В качестве мишени использовали 0,35 г порошка хлорида цезия в пластиковой капсуле.

Соотношение радиационных и ионизационных потерь в релятивистской области приближения равно:

$$\frac{(dE/dX)_{\text{рад}}}{(dE/dX)_{\text{ион}}} = \frac{E \cdot Z}{800},$$

где  $E$  – энергия электронов в МэВ,  $Z$  – заряд ядра тормозной мишени.

Схема проведённого эксперимента показана на рис. 4.

Активация длилась 80 мин. После облучения мишени измерялись на полупроводниковом спектрометре Canberra с детектором из сверхчистого германия большого объема с энергетическим разрешением 1,8 кэВ по гамма-линии 1332 кэВ  $^{60}\text{Co}$  и относительной эффективностью регистрации гамма-квантов с энергией 1332 кэВ  $^{60}\text{Co}$  в пике полного поглощения – 102 %, по сравнению с детектором NaI(Tl)  $7,5 \times 7,5$  см.

Ниже приведены фрагменты полученных спектров через 2,61, 9,8 и 21,73 сут после окончания облучения (рис. 5).

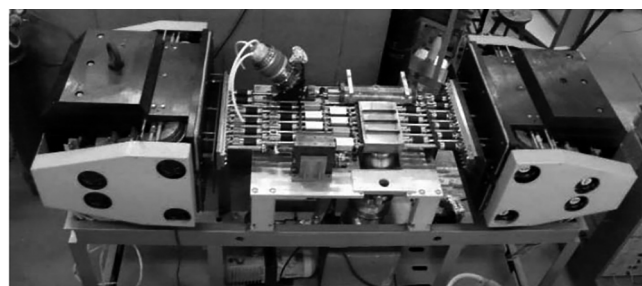


Рис. 3. Разрезной микротрон НИИЯФ МГУ 55 МэВ

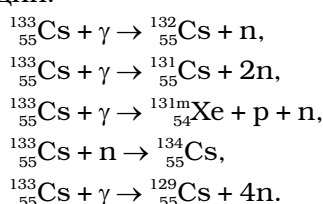
Таблица 1

Параметры микротрона НИИЯФ МГУ

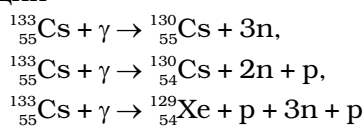
Энергия пучка на выходе	55 МэВ	Прирост энергии за оборот	5 МэВ
Ток пучка на выходе	До 10 мА	Частота работы	2856 МГц
Частота инъекции	5–50 Гц	Магнитное поле	1 Тл
Число участков линейного ускорения	11	Максимальная мощность	2,5 МВт
Длина импульса	5 мкс		

## Результаты и обсуждение

Результаты обработки полученных спектров позволяют заключить о наличии в облученном образце результатов следующих реакций:



Можно с уверенностью утверждать, что реакции



также имели место, но период полураспада  ${}^{130}\text{Cs}$  – порядка нескольких минут, а изотопы ксенона стабильны и их не удастся идентифицировать в спектрах. Однако в спектре было определено по излучению энергии 163,9 кэВ достаточное количество возбужденных ядер  ${}^{131\text{m}}\text{Xe}$ . Этот возбужденный изотоп довольно интенсивно излучает гамма-кванты с энергией 29 и 34 кэВ, однако его вклад не превышает десятых долей процента.

Из всех продуктов облучения можно отметить изотоп  ${}^{134}\text{Cs}$ , который образовался не непосредственно в результате фотоядерных реакций, а при захвате ядрами  ${}^{133}\text{Cs}$  нейтронов, образующихся в реакциях  $(\gamma, xn)$ , где  $x$  может достигать 5.

В пики излучения 29 и 34 кэВ вносят вклад 4 изотопа:  ${}^{129}\text{Cs}$ ,  ${}^{131}\text{Cs}$ ,  ${}^{131\text{m}}\text{Xe}$  и  ${}^{132}\text{Cs}$ . Сечения их образования приведены на рис. 6. Их периоды полураспада составляют:

$$\begin{aligned} T_{1/2}({}^{129}_{55}\text{Cs}) &= 32 \text{ ч}, \\ T_{1/2}({}^{131\text{m}}_{54}\text{Xe}) &= 11,84 \text{ сут}, \\ T_{1/2}({}^{131}_{55}\text{Cs}) &= 9,69 \text{ сут}, \\ T_{1/2}({}^{132}_{55}\text{Cs}) &= 6,48 \text{ сут}. \end{aligned}$$

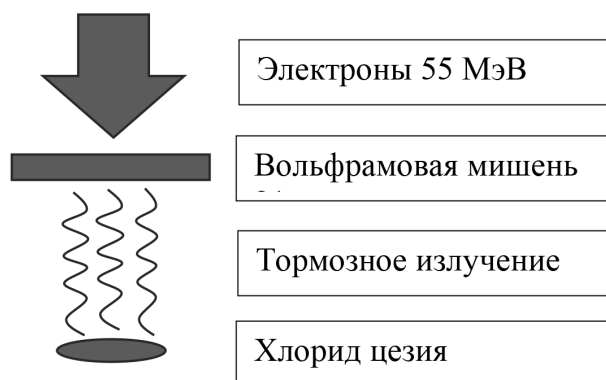


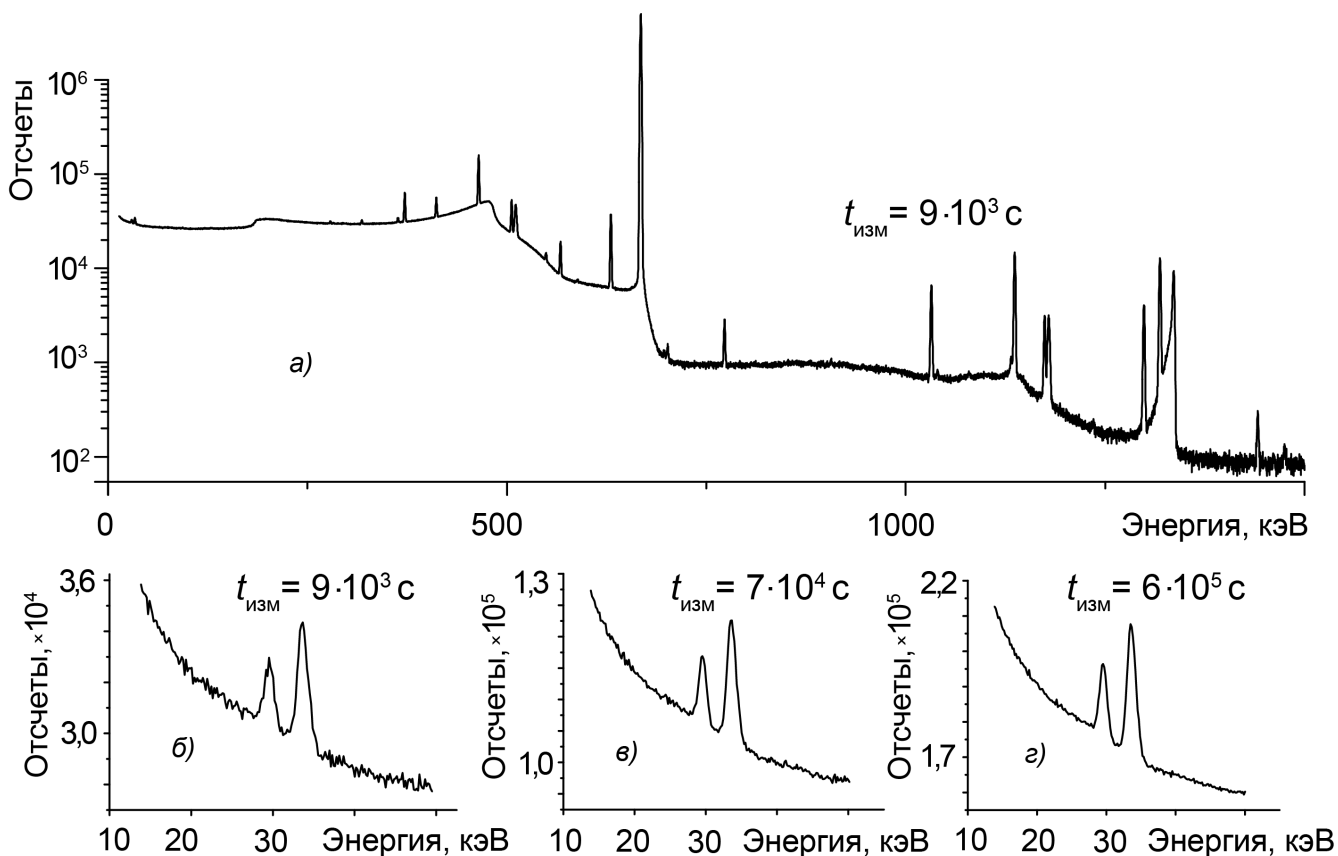
Рис. 4. Схема эксперимента

Помимо того, что у  ${}^{129}\text{Cs}$  малое сечение реакции, этот изотоп имеет сравнительно короткий период полураспада, что сводит его влияние к минимуму. Ксенон также отличается малым сечением образования.

Таким образом, получается, что в интересные рентгеновские пики ощутимый вклад вносят лишь изотопы  ${}^{131}\text{Cs}$  и  ${}^{132}\text{Cs}$ . Однако, так как  ${}^{131}\text{Cs}$  распадается электронным захватом и его распад не сопровождается выходом гамма-квантов, то оценить его вклад в суммарные рентгеновские пики 29 и 34 кэВ мы можем только отследив изменения интенсивности этих пиков, связанные с периодом полураспада  ${}^{131}\text{Cs}$  и  ${}^{132}\text{Cs}$ . Для этого мы исследовали на полупроводниковом спектрометре активность образца через 9,8 и 21,73 сут после активации.

Уравнение позволяет оценить вклад активности  ${}^{131}\text{Cs}$  и  ${}^{132}\text{Cs}$  по отношению друг к другу по изменению интенсивности рентгеновских пиков со временем:

$$\frac{I_2}{I_3} = \frac{N_0^{132} (1 - e^{-\lambda^{132} t_2^{\text{изм}}}) \cdot e^{-\lambda^{132} t_2^n} + N_0^{131} (1 - e^{-\lambda^{131} t_2^{\text{изм}}}) \cdot e^{-\lambda^{131} t_2^n}}{N_0^{132} (1 - e^{-\lambda^{132} t_3^{\text{изм}}}) \cdot e^{-\lambda^{132} t_3^n} + N_0^{131} (1 - e^{-\lambda^{131} t_3^{\text{изм}}}) \cdot e^{-\lambda^{131} t_3^n}}, \quad (1)$$



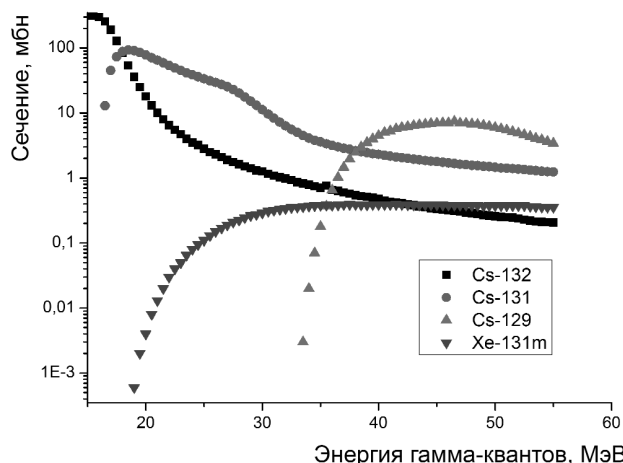
**Рис. 5.** Спектры облученной мишени цезия: (а) – общий вид спектра через 2,61 суток после окончания облучения; фрагменты измеренных спектров по прошествии 2,61 (б), 9,8 (в) и 21,73 (z) суток после окончания облучения в области энергий 10–50 кэВ

$N_0$  – количество ядер радиоактивного изотопа на момент активации,  $I_2$  – интенсивность рентгеновского пика в момент измерения спектра через 9,8 сут после активации,  $I_3$  – через 21,73 сут после активации,  $\lambda$  – постоянная распада изотопа (1/с),  $t^{\text{изм}}$  – реальное время измерения спектра (с),  $t^{\text{в}}$  – время от активации до момента измерения спектра (с), верхние индексы “131” и “132” обозначают массовое число изотопа Cs, а нижние индексы “2” и “3” – принадлежность спектру, полученному через 9,8 и через 21,73 сут после активации соответственно.

Для корректного учета изменения геометрии при измерениях на спектрометре через 9,8 и 21,73 сут после активации вводили поправку, полученную из данных об интенсивности гамма-линии  $^{132}\text{Cs}$  464 кэВ в измеренных спектрах через 9,8 и 21,73 сут.

С учетом вышеизложенного отношение количества ядер двух изотопов к концу облучения оказалось равным:

$$\frac{N_0^{131}}{N_0^{132}} = 0,7 \pm 0,1.$$



**Рис. 6.** Сечения образования  $^{129}\text{Cs}$ ,  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{131}\text{Cs}$ ,  $^{132}\text{Cs}$  (данные моделирования сечений реакций в программе TALYS)

Количество ядер  $^{132}\text{Cs}$ , распавшихся во время измерения спектра, можно определить из любой удобной гамма-линии (например, 464 кэВ) по формуле:

$$N = \frac{1}{\eta \varepsilon t_{\text{изм}}}, \quad (2)$$

где  $I$  – интенсивность гамма-линии,  $\eta$  – квантовый выход (число, показывающее, сколько гамма-квантов с данной энергией вылетает при одном распаде),  $N$  – число распавшихся во время измерения ядер,  $\varepsilon$  – эффективность регистрации детектора. А из закона радиоактивного распада можно рассчитать активность изотопов на момент окончания облучения.

В итоге активность в образце  $^{132}\text{Cs}$  оказалась равной –  $17,5 \pm 1,2$  мкКи, а активность  $^{131}\text{Cs}$  оказалась равной  $12,2 \pm 1,0$  мкКи на момент окончания облучения.

Для нахождения выходов реакций нужно решить дифференциальное уравнение, характеризующее накопление радиоактивных атомов в облучаемом образце:

$$dN = \Phi \sigma N_{\text{ст}} dt - \lambda N dt, \quad (3)$$

где  $N$  – число радиоактивных атомов,  $\Phi$  – поток налетающих частиц, нормально пересекающих единичную площадку за 1 с ( $1/(\text{см}^2\text{с})$ ),  $\sigma$  – сечение реакции ( $\text{см}^2$ ),  $N_{\text{ст}}$  – число стабильных ядер, способных прореагировать в объёме, пересечённом частицами,  $\lambda$  – постоянная распада ( $1/\text{с}$ ),  $t$  – время активации (с). Первое слагаемое характеризует образование радионуклида, второе – его распад. Интегрирование этого выражения при начальном условии  $N(t=0)=0$  даёт следующую зависимость активности от времени активации:

$$N = (\Phi \sigma N_{\text{ст}} (1 - e^{-\lambda t})) / \lambda. \quad (4)$$

Таким образом, зная активность, параметры пучка и облучаемой мишени, можно оценить сечения реакций  $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2n)^{131}\text{Cs}$  и  $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)^{132}\text{Cs}$ :

$$\sigma_{131} = 8 \pm 2 \text{ мбн},$$

$$\sigma_{132} = 13 \pm 1 \text{ мбн}.$$

Теоретические интегральные сечения реакций можно получить, проинтегрировав распределение  $\sigma_{\gamma, n}$  по энергии с тормозным распределением гамма-квантов, полученному из моделирования эксперимента по программе GEANT-4.

$$\sigma_{131}^{\text{теор}} = 5 \pm 1 \text{ мбн},$$

$$\sigma_{132}^{\text{теор}} = 15 \pm 2 \text{ мбн}.$$

Можно отметить, что теоретические значения оказались для  $^{131}\text{Cs}$  оказались заниженными по сравнению с экспериментальными, а для  $^{132}\text{Cs}$  в пределах погрешности наших измерений и расчётов полученные данные о сечениях хорошо согласуются. Одним из возможных объяснений может быть то, что происходит реакция  $(\gamma, n)$  на образовавшемся  $^{132}\text{Cs}$ . Это приводит к уменьшению активности  $^{132}\text{Cs}$  и одновременно увеличивает активность  $^{131}\text{Cs}$ .

Нами были также получены интегральные сечения для статистических процессов с использованием программы TALYS. Интегральные сечения оказались равными:

$$\sigma_{131}^{\text{инт}} = 4,4 \text{ мбн},$$

$$\sigma_{132}^{\text{инт}} = 15,4 \text{ мбн}.$$

Как видно, и в этих расчетах наблюдается аналогичное соотношение. Значительное завышение экспериментальных значений для  $^{131}\text{Cs}$  также может быть связано с вкладом предравновесных процессов. К сожалению, экспериментальные данные имеются только до 30 МэВ, но даже из этих исследований видно, что в области более высоких энергий  $\sigma_{131}$  составляет 20–30 мбн, а для  $\sigma_{132}$  – 5–10 мбн. Если такая тенденция будет наблюдаться и в области энергий 30–50 МэВ, то это может приводить к увеличению выхода  $(\gamma, 2n)$ -реакции по сравнению с  $(\gamma, n)$ -реакцией.

## Заключение

В брахитерапии для курса лечения пациента обычно применяют от 10 до 60 микроисточников. Активность одного терапевтического микроисточника  $^{131}\text{Cs}$  составляет порядка  $10^{-3}$  Ки. В облучении, проведённом на 0,35 г хлорида цезия в течение 80 минут, мы получили активность по  $^{131}\text{Cs}$   $12,2$  мкКи. Таким образом, для наработки активности, требуемой для введения одному пациенту, необходимо увеличить ток пучка электронов до 50 мкА, либо увеличить время облучения образца. Для получения такой активности время облучения на микротроне НИИЯФ МГУ составит порядка 7 ч. По нашим расчётам наработка требуемого количества становится возможной при использовании промышленных ускорителей электронов с токами порядка 50 мА.

Поскольку период полураспада  $^{132}\text{Cs}$  примерно в полтора раза меньше, чем у  $^{131}\text{Cs}$ , то через четыре месяца после облучения химическая чистота  $^{131}\text{Cs}$  станет достаточной, для его применения в качестве имплантата, но его активность уменьшится примерно на три порядка.

В дальнейшем необходимо также исследовать  $^{131}\text{Cs}$  в области энергий электронов 30–45 МэВ для выбора оптимального режима облучения.

Таким образом, исследование наработки  $^{131}\text{Cs}$  предлагаемым методом при различных режимах и энергиях работы ускорителей электронов позволит разработать простой метод получения этого медицинского источника, причем практически без образования значительного количества радиоактивных отходов.

Статья написана при финансовой поддержке гранта “УМНИК” по теме “Разработка технологии получения перспективных низкоэнергетических источников ионизирующего излучения для лучевой терапии онкологических заболеваний с использованием линейных ускорителей электронов”, договор №13365 ГУ/2018. Руководитель проекта – Е.Н. Лыкова.

## Список литературы

1. Kehwar T.S., Jones H.A., Huq M.S., Smith R.P. Changes in radiobiological parameters in  $^{131}\text{Cs}$

permanent prostate implants // J. Radiother. in Practice. 2013. Vol. 12, P. 66–79.

2. Glaser S.M., Benoit R.M., Smith R.P., Beriwal S. Long-term quality of life in prostate cancer patients treated with Cesium-131// Brachytherapy. 2016. Vol. 15, P. 48–53.

3. Knaup C., Mavroidis P., Esquivel C. et al. Radiobiological comparison of single and dual-isotope prostate seed implants // J. Radioth. in Practice. 2013. Vol. 12. P. 154–162.

4. Yondorf M.Z., Parashar B., Sabbas A. et al. Radiation exposure after neurosurgical resection and permanent intraoperative Cesium-131 radio-isotope brachytherapy in patients with brain tumors // Brachytherapy. 2014. Vol. 13, P. 109–110.

5. Zlokazov S., Swanberg D.J., Egorov O. et al. Method for large scale production of cesium-131 with low cesium-132 content. US patent application publication. Jun. 7, 2012.

6. National Isotope Development Center, “NIDC: Medical Radioisotopes,” URL: [http://www.isotopes.gov/outreach/med\\_isotopes.html](http://www.isotopes.gov/outreach/med_isotopes.html). (дата обращения 15.08.2018).

7. Tárkányi F., Hermanne A., Takács S. et al. Cross section measurements of the  $^{131}\text{Xe}(p,n)$  reaction for production of the therapeutic radionuclide  $^{131}\text{Cs}$  // Appl. Radiat. Isot. 2009. Vol. 67. № 10. P. 1751–1757.

## INVESTIGATION OF $^{131}\text{Cs}$ MEDICAL ISOTOPE PRODUCTION IN PHOTONUCLEAR REACTIONS

A.V.Belousov<sup>1</sup>, M.V. Zheltonozhskaya<sup>1</sup>, E.N. Lykova<sup>1</sup>, P.D. Remisov<sup>1</sup>, A.P. Chernyaev<sup>1</sup>, V.N. Iatsenko<sup>2</sup>

<sup>1</sup> M.V. Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia

<sup>2</sup> A.I. Burnasyan Federal Medical Biophysical Center, Moscow, Russia

The possibility of alternative method of producing the  $^{131}\text{Cs}$  medical isotope was investigated. For this purpose, a natural cesium target was irradiated with the pulsed microtron accelerator with an electron energy of 55 MeV and an average current of 40–45 nA during 80 min.

The obtained  $^{131}\text{Cs}$  activity at the end of irradiation from 0.35 g cesium chloride was  $12.2 \pm 1.0 \mu\text{Ci}$ . The experimental cross-section of  $^{133}\text{Cs}(\gamma, 2n)^{131}\text{Cs}$  reaction  $\sigma(^{131}\text{Cs})=8 \text{ mb}$  was calculated.

For production the required medical isotope activity for a one patient therapy, it is necessary to increase the electron beam current to 50  $\mu\text{A}$ , or to increase the time of sample irradiation. The time of obtaining a single dose of medical isotope at the SINP MSU microtron accelerator of should be about 7 hours.

Key words: *medical isotopes, activation, electron accelerators, photonuclear reactions,  $^{131}\text{Cs}$ , brachytherapy*

E-mail: [iv-kate@yandex.ru](mailto:iv-kate@yandex.ru)