

Масс-сепаратор НЭОЯСиРХ ЛЯП

для ядерно-спектроскопических исследований и ядерной медицины

Введение

1. Историческая справка
Методы разделения радиоизотопов
2. Электромагнитный масс-сепаратор
3. Современное применение масс-сепараторов.
ISOL-системы в TRIUMF и CERN
4. Масс-сепаратор НЭОЯСи РХ ЛЯП
История
Современное состояние
Физические задачи

Проект «Радиохимия и спектроскопия для астрофизики и ядерной медицины»
(03-2-1100-1-2024/2028) темы «Неускорительная нейтринная физика и астрофизика.»

1. Проблема разделения радиоизотопов

Исторически появление *электромагнитных масс-сепараторов* в арсенале физиков связано с созданием *ядерного оружия*, а позднее и становлением *ядерной энергетики*



Программы создания ядерного оружия

Германия 1939– 1945 (не реализована)

Британия 1940 – 1952

США 1939(1942 МП) – 1946

СССР 1943 – 1949

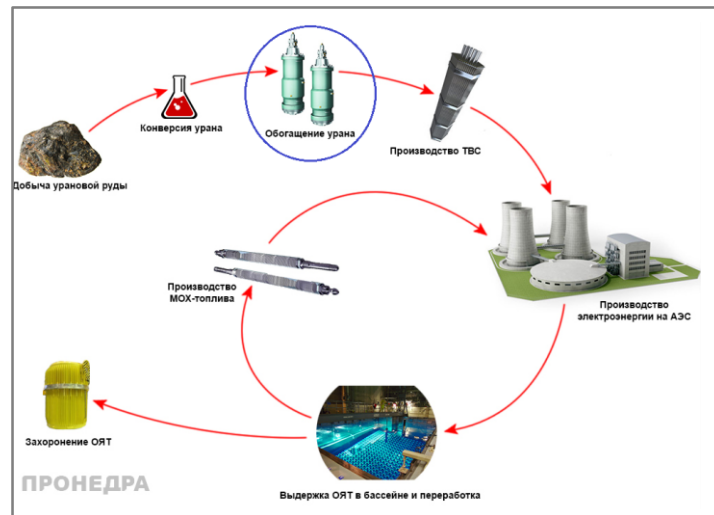
Франция 1954 - 1958

Ядерная энергетика, 1950-е годы



Общая задача: проблема разработки промышленных методик извлечения ^{235}U из естественной смеси изотопов $^{234}\text{U}(5,4 \cdot 10^{-3}\%)$, $^{235}\text{U}(7,2 \cdot 10^{-1}\%)$, $^{238}\text{U}(99,27\%)$

Промышленный цикл

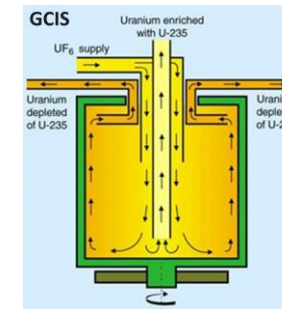
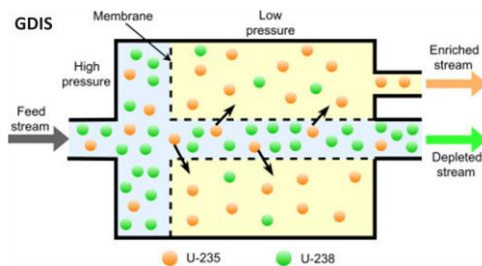


[<https://www.atomic-energy.ru/SMI/2017/03/15/73650>]

2. Методы разделения изотопов

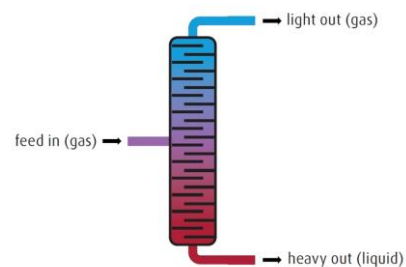
1) Молекулярно-кинетические:

- газодиффузный, $v_{\text{ср}}^M = \sqrt{\frac{8RT}{\pi M}}$;
- центрифугирование;

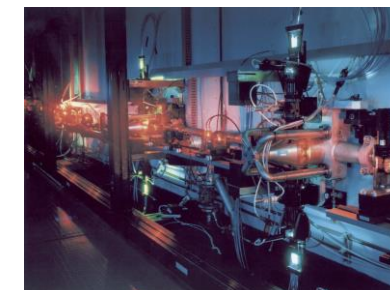
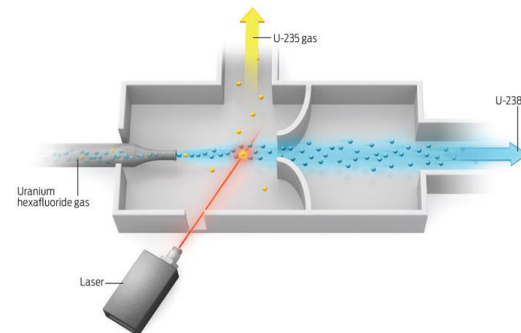


2) Физико-химические:

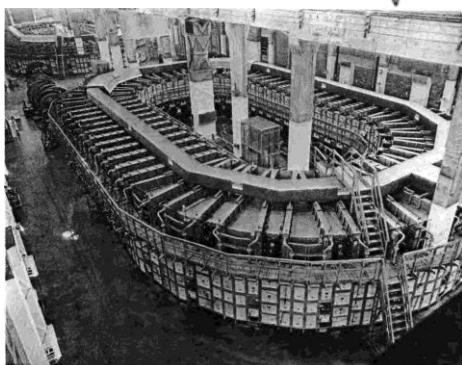
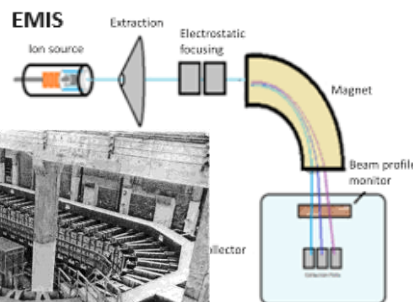
- фракционная возгонка;
 - изотопный обмен
- $$\chi(A^1Y) + A^{1,2}Y = \chi(A^2Y) + A^1Y$$



3) Лазерная селективная ионизация атомов



4) Электромагнитная масс-сепарация (ЭМС), $\rho \sim \sqrt{\frac{M}{q}}$

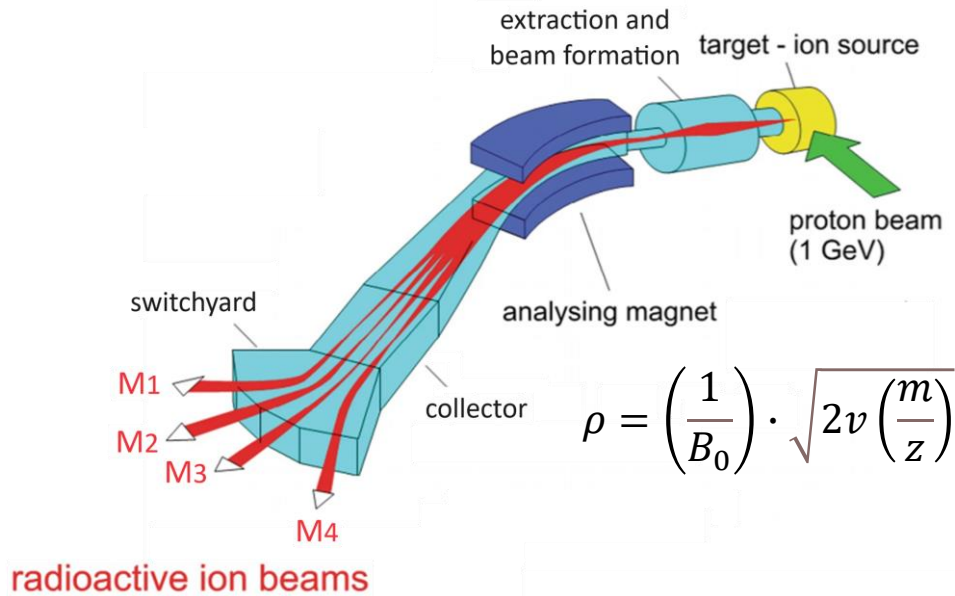


Calutron
Университет Калифорнии

Задачи разделения изотопов на ЭМС:

1. Макроколичества от макроколичества вещества
2. Микроколичества от микроколичества вещества
3. Микроколичества от макроколичества вещества
4. «On-line» разделение микроколичеств от макроколичеств р/а вещества

3. Электромагнитный масс-сепаратор

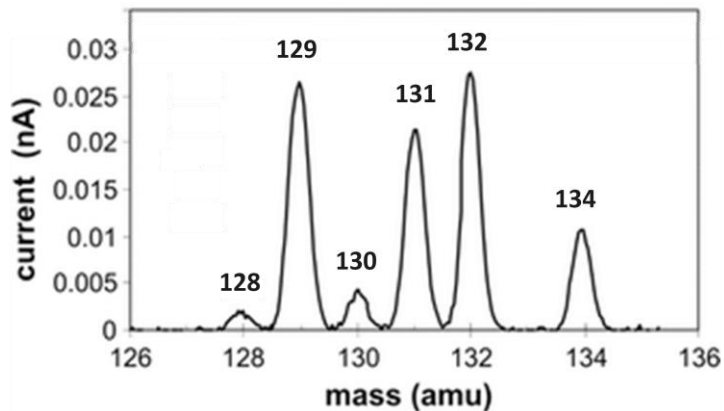


Основные элементы установки

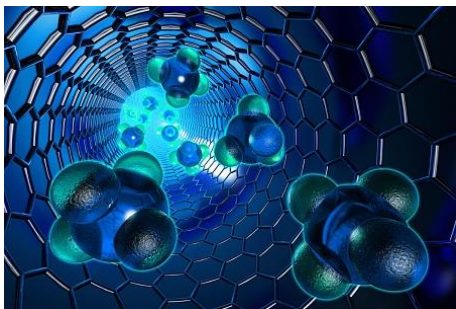
- Источник ионов (IS)
 - элементный выход
- Электростатическая система формирования пучка ионов
- Магнитный масс-анализатор (AM)
 - *трансмиссия* (~80%), *дисперсия* $D = R \cdot \frac{\Delta M}{M} \sim 10\,000$
- Система формирования и транспортировки пучка масс-сепарированных ионов (RIB)

Преимущества ЭМС

- ✓ разделение изотопов элементов от *самых легких* до *СТЭ*
- ✓ *изотопная и химическая (+ радиохимия) чистота разделения*
- ✓ *одновременное масс-сепарирование изотопов данного элемента в единичном акте разделения*
- ✓ *режимы работы:*
 - автономный: *радиохимия + масс-сепаратор*
 - «on-line»: *ускоритель (реактор) + масс-сепаратор*



4. Современное применение масс-сепараторов. ISOL-и In-Flight системы



- Фундаментальные исследования
- ядерная физика низких энергий
 - физика твердого тела



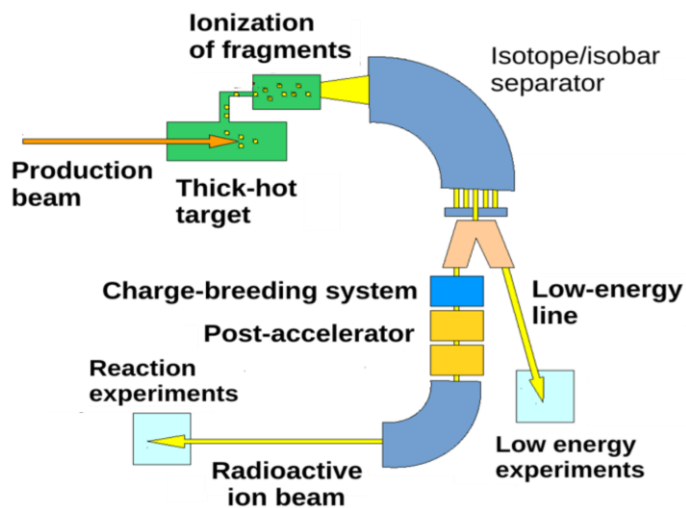
Ядерная медицина

- синтез диагностических и терапевтических радиофармпрепаратов

ISOL-система

(Isotope mass Separator On-Line facility)

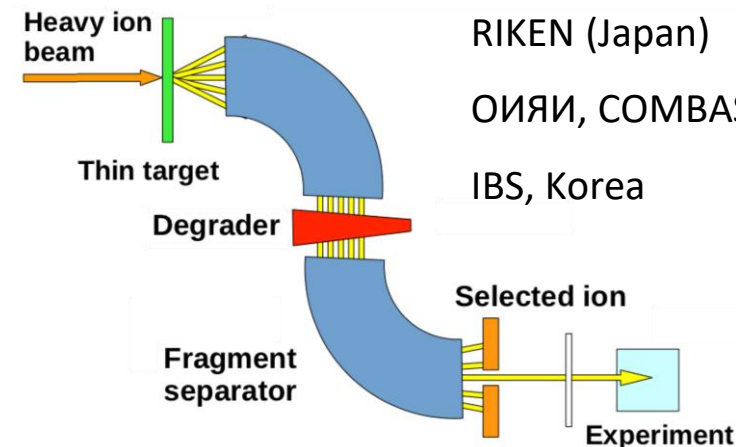
Продукты реакции (Z, A) остаются в мишени до извлечения в ионный источник



CERN - ISOLDE-CERN $E_p=1,4$ ГэВ/2 мкА
 TRIUMF, ISAC-I/II, $E_p=0,5$ ГэВ/0,1 мА
 INFN – SPES, Italy, $E_p=40$ МэВ/0,2 мА
 GANIL - SPIRAL2, LinAc, $E_D=40$ МэВ/5 мА
 IBS - RISP, Korean, $E_p=70$ МэВ/0,5 мА
 LinAc 660 MeV, 0.6 мА

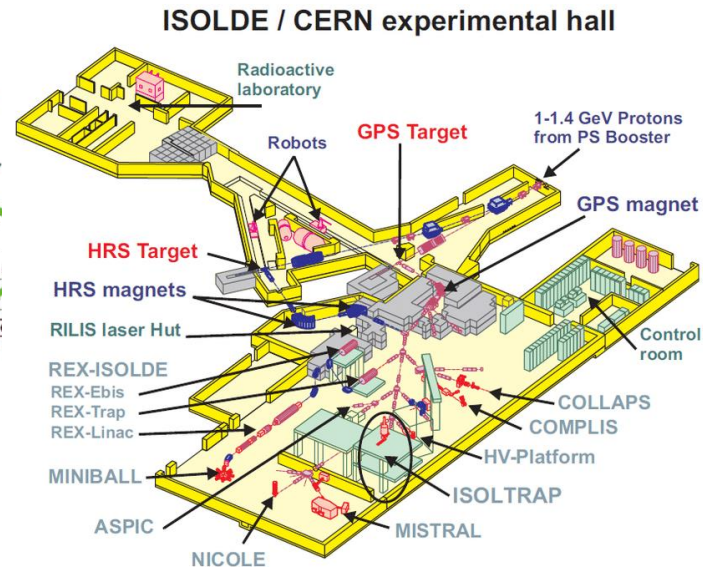
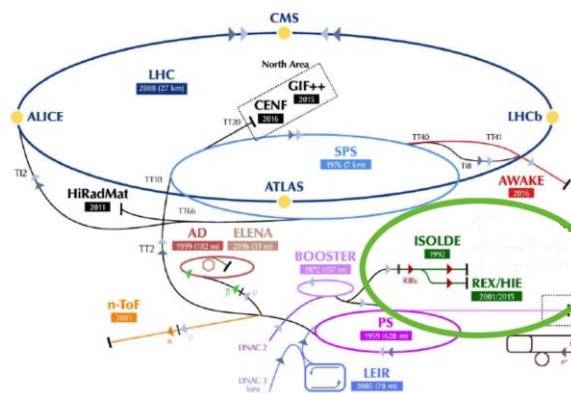
In-Flight-система

Кинематика столкновения ускоренной частицы с ядрами тонкой мишени ($T_{1/2} \sim 0,1$ мкс) ($v_n/v_p \sim 0.9 - 1.0$). Цель – отделение продуктов реакции от бомбардирующих частиц.



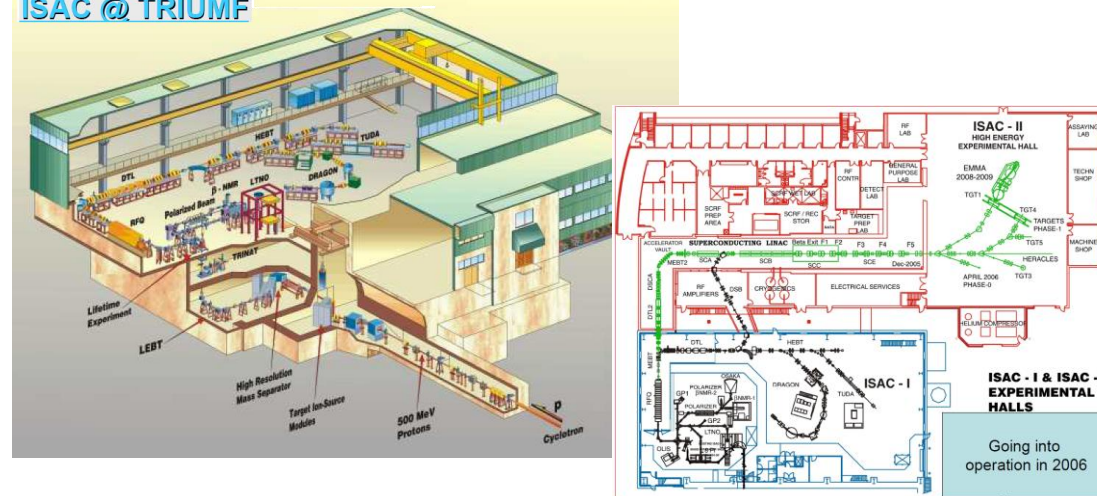
GSI, Germany - GANIL-SPIRAL
 MSU, USA - NLSCC
 RIKEN (Japan)
 ОИЯИ, COMBAS-DUBNA
 IBS, Korea

ISOLDE-CERN (Isotope Separator On Line DEvice)



TRIUMF-ISAC- I/II (Isotope Separator and Accelerator)

ISAC @ TRIUMF



LE RIB (Low Energy Radioactive Ion Beams), $E_{RIB} = 60$ кэВ;

HIE-ISOLDE (High Intensity and Energy), SC-LinAc, E_{RIB} до 10 МэВ/нуклон

ISAC I, E_i от 2 кэВ/н до 150 кэВ/н

ISAC II (SC-LinAc), E_i от 150 кэВ/н до 16,5 МэВ/н

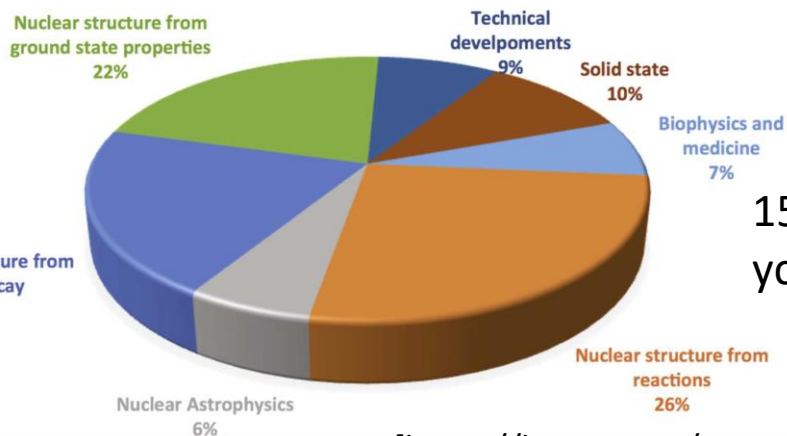
ISAC-I/II - 11 экспериментальных установок

- ✓ Ядерная спектроскопия - $\delta\pi$ -спектрометр TIGRESS, DSL
- ✓ Ядерные реакции: нуклеосинтез и мультифрагментации ядер (астрофизика) – DRAGON, HERACLES, TUDA, TACTIC
- ✓ Лазерная спектроскопия короткоживущих изотопов
- ✓ Масс-спектрометрия короткоживущих изотопов – TITAN, EMMA
- ✓ Проект ARIEL – фотоядерные реакции, e -LinAc $E_e = 30$ МэВ

[<https://www.triumf.ca/research-program/research-facilities/isac-facilities>]

CERN-MEDICIS (Medical Isotopes Collected from Isolde)

15 экспериментальных установок



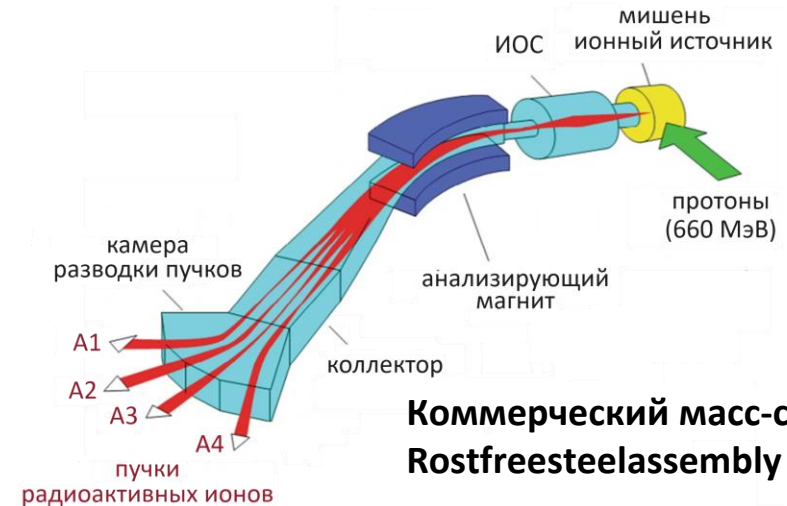
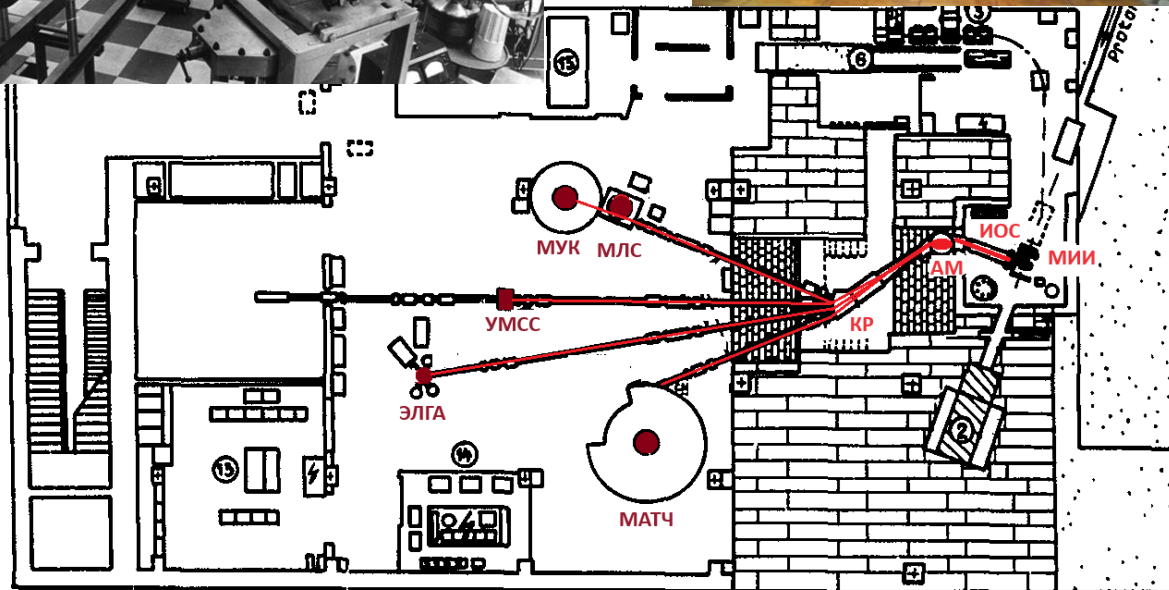
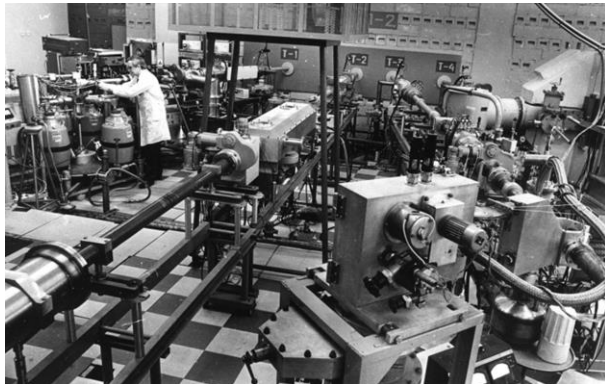
[<https://home.cern/science/experiments/Isolde>]

5. Масс-сепаратор комплекса НЭОЯСиРХ ЛЯП

Ядерная спектроскопия на базе (СЦа) фазотрона ЛЯП ОИЯИ, $E_p=660$ МэВ/3 мкА, 2 мкА

1970 по 1979 гг. Масс-сепарация радионуклидов *off-line*

1989 по ~ 2000-х гг. *ISOL-комплекс ЯСНАПП-2 on-line*



Коммерческий масс-сепаратор Rostfreesteelassembly (Дания)

- ✓ **ЭЛГА** - ПП и СЦ детекторы, α -, β -, γ -, X-излучения, ЭВК и γ - γ -совпадений
- ✓ **МЛС** – спектрометр e - γ -совпадений на базе магнитного β -спектрометра
- ✓ **МУК** – спектрометр пространственных и временных корреляций γ -излучения
- ✓ **МАТЧ** - магнитный анализатор тяжелых частиц
- ✓ **УМСС** - измерение времен жизни ядерных состояний

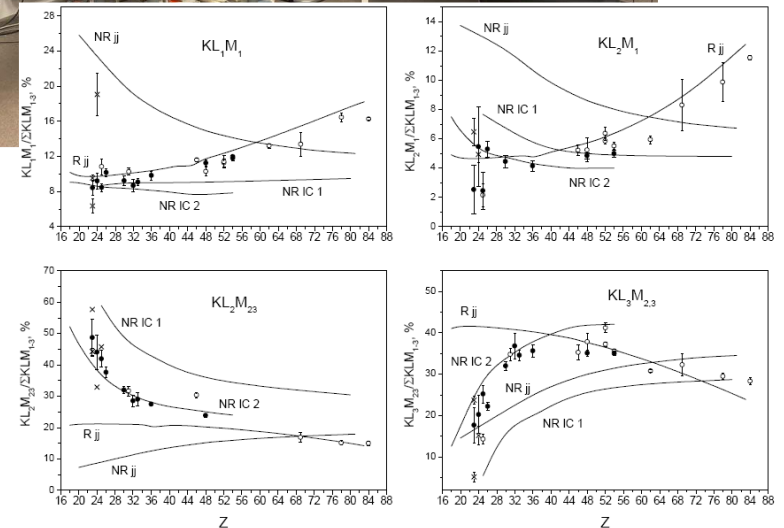
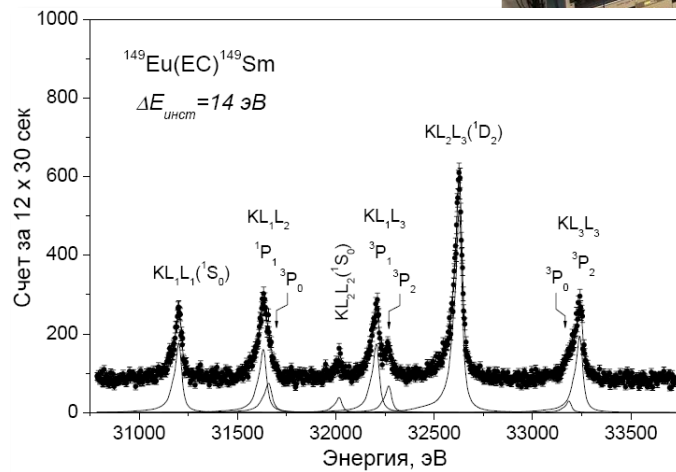
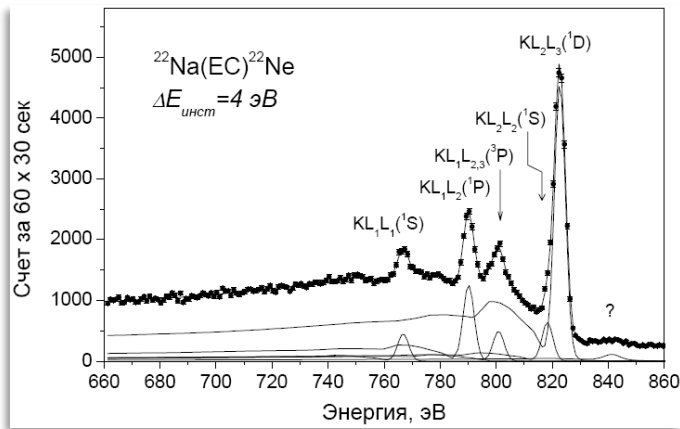
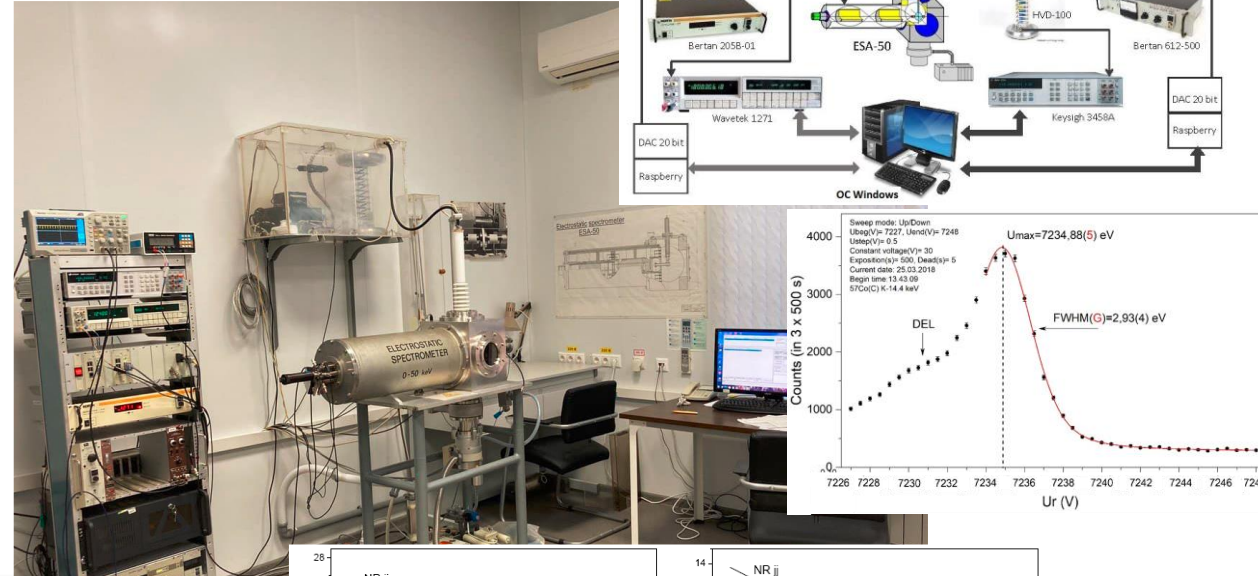
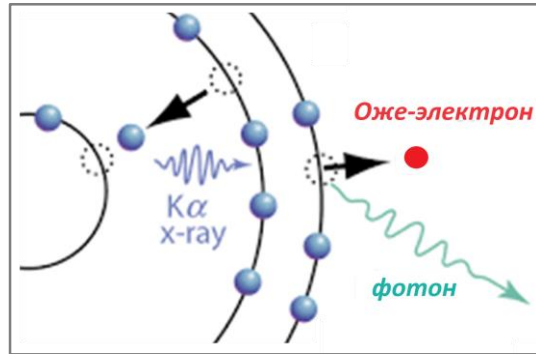
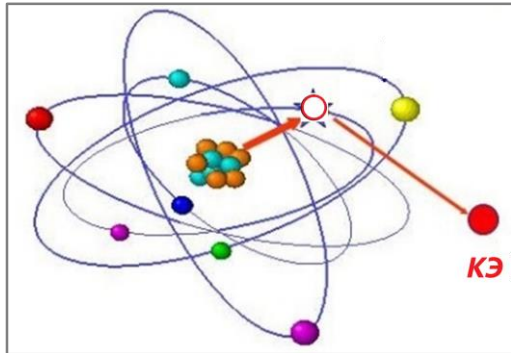
В начале 2000-х гг. программа ЯСНАПП-2 завершена

С 2000-х гг масс-сепаратор функционировал в off-line режиме

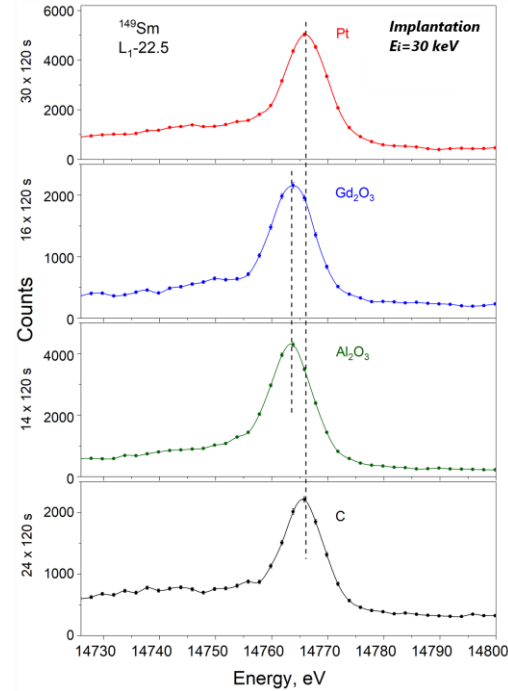
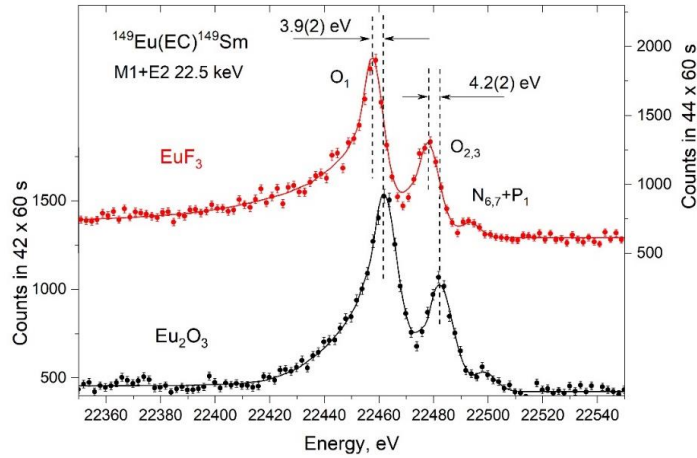
- Имплантированные р/а источники для ядерной-спектроскопии
- Радиохимические исследования

Низкоэнергетическая ядерная электронная спектроскопия на ESA-50

Спектроскопия конверсионных электронов ядерных переходов и оже-электронов



Влияние физико-химического состояния радиоактивных атомов на спектры низкоэнергетических электронов



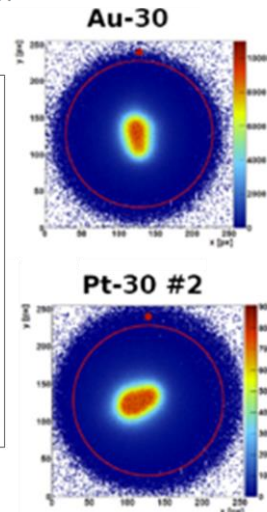
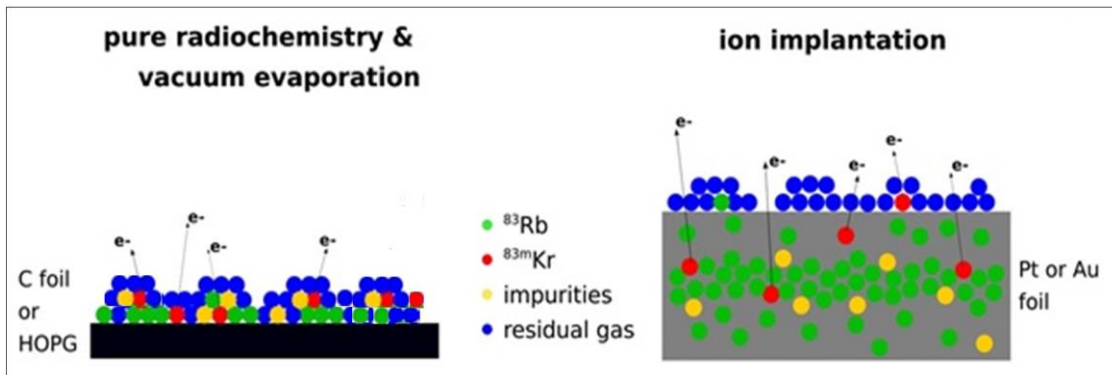
Проект KATRIN ($m_{\nu(e)}c^2 \sim 0,2$ эВ 90% CL):
энергетический репер с $\Delta E_e \pm 60$ мэВ

[<https://www.katrin.kit.edu/>]

Твердотельный радиоактивный источник с
долговременной стабильностью ф/х свойств

$^{83}\text{Rb}(\text{EC})^{83\text{m}}\text{Rb}$ $E_e(K) = 17824.3 \pm 0.5$ эВ $\Gamma(K) = 2,7$ эВ

Source	Drift (days 0 – 26)		Drift (days 0 – 46)	
	Abs., meV/month	Rel., ppm/month	Abs., meV/month	Rel., ppm/month
Pt-30	-5(6)	-0.27(32)	-17(3)	-0.96(17)
Pt-30-2	11(3)	0.63(18)	18(3)	1.02(16)
Pt_15	4(2)	0.23(14)	3(3)	0.19(14)
Au-30	43(3)	2.39(19)	47(3)	2.64(16)



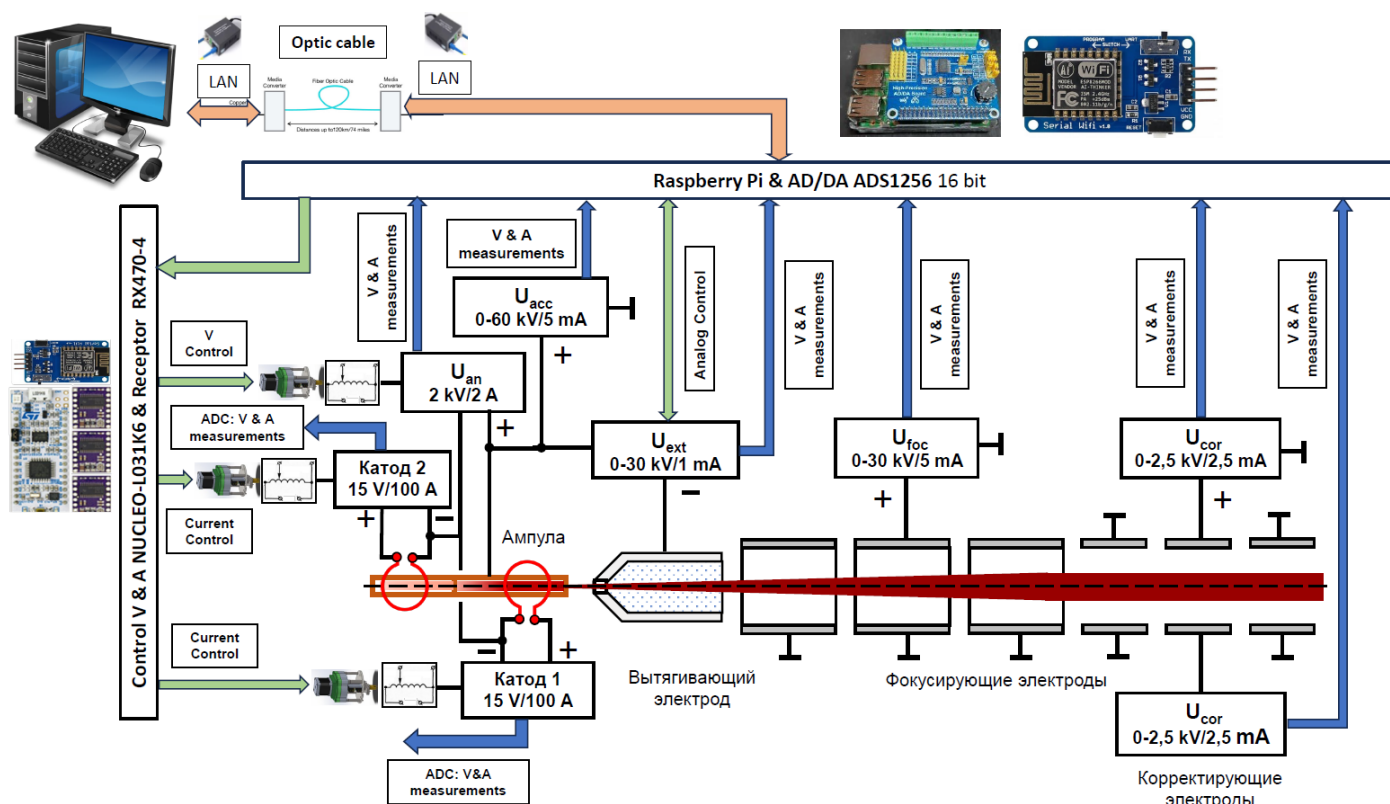
6. Модернизация инфраструктуры масс-сепаратора

В 2021 г. принято решение о поэтапном обновлении устаревшего оборудования масс-сепаратора

2021 – 2022 гг. обновлено оборудование систем охлаждения и вакуума:

2022 г.: начаты работы по модернизации системы питания ИОС и расширению парка ионных источников

Питание ИОС - блоки с программным управлением



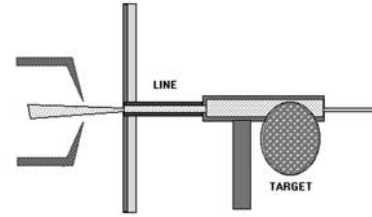
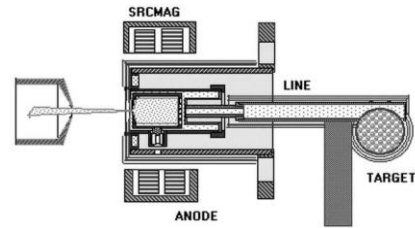
Планируется глубокая модернизация схемы электропитания ИОС в целом

Ионные источники (ИИ)

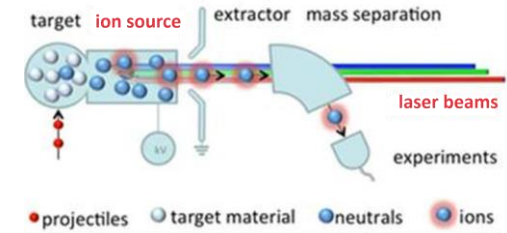
ИИ ISOL-систем. Ионизация атома продукта реакции в газовой фазе

➤ ИПИ - ионизация атома на разогретой (~2500° C) поверхности

➤ Плазменный ИИ



➤ Лазерный ИИ

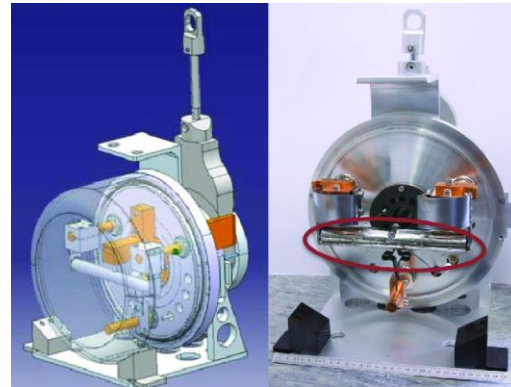


ИПИ конструкции ЛЯП



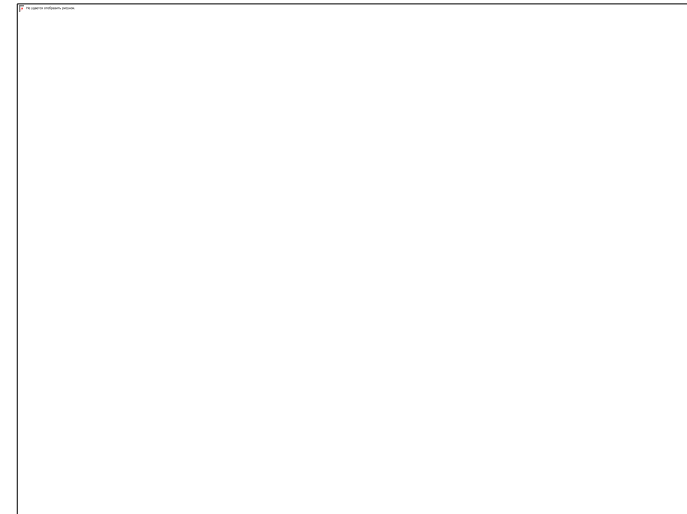
В ЦЭОП ЛЯП завершено изготовление и испытание узлов ИИ.

Новый ИПИ конструкции ISOLDE. ПИЯФ НИЦ «Курчатовский институт» (г. Гатчина)



КО ЛЯП: модифицированы отдельные узлы и изготовлены рабочие чертежи

В перспективе планируется расширить парк ИИ плазменным источником



7. Программа исследований на будущее

Основными требованиями, предъявляемыми к исследовательским и медицинским радиопрепаратам являются *изотопическая чистота и высокая удельная активность*

В ряде случаев, применение масс-сепаратора является обязательным условием для достижения поставленных целей

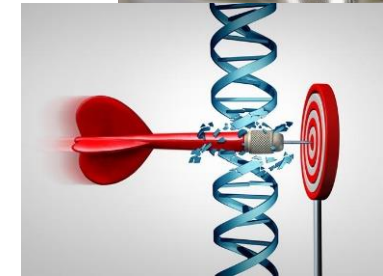
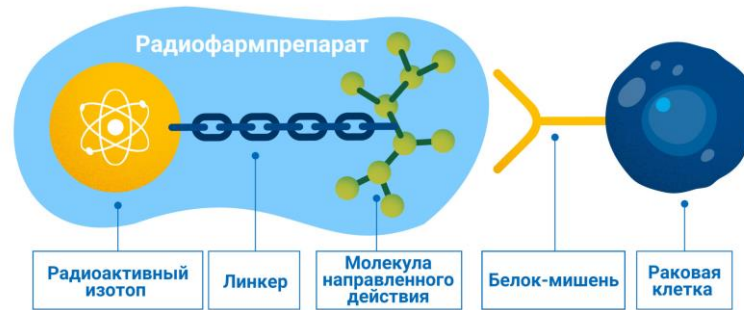
Радиофармпрепараты (РФП) для диагностики и терапии раковых заболеваний

! *Максимальный терапевтический эффект, минимизация поражения здоровых тканей*

Мишенная терапия - избирательная биологическая доставка ИИИ к проблемной клетке с помощью **радиофармпрепаратов**

Радиофармпрепарат – сложная молекула

- ✓ Молекула направленного действия (вектор)
- ✓ Радиоактивный атом (излучатель α -, β -, γ -частиц и оже-электронов)
- ✓ Хелатор (часть молекулы связывающая радиоактивный атом)
- ✓ Линкер (часть молекулы прикрепляющая хелатор к вектору)



Частица	ЛПЭ, кэВ/мкм	λ , мкм	$D_{кл}$, мкм	$D_{днк}$, мкм	$\lambda/D_{кл}$
α , 5 - 9 МэВ	230 – 80	40 - 100			3 - 8
β -, 0,05 – 2,3 МэВ	~0,2	50 – 1,2E4	12	3,0E-3	4 – 1,0E3
Оже-эл-ны, эВ – 10 кэВ	26 - 4	2,0E-3 – 0,5			1,7E-4 – 4,0E-2

Альф-излучатель ^{225}Ac $^{232}\text{Th}(p,x)^{225}\text{Ac}$

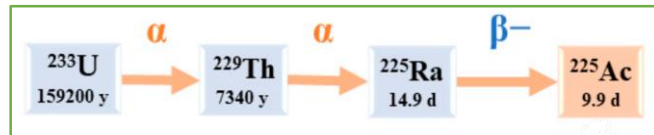
$E_{\alpha}(^{225}\text{Ac})=5,9 \text{ МэВ}$, $T_{1/2}=10 \text{ дн}$

Генератор ^{213}Bi $E_{\alpha}(^{213}\text{Bi})=6,0 \text{ МэВ}$, $T_{1/2}=46 \text{ мин.}$

Основные методы производства ^{225}Ac

Features	Thorium-229 radionuclide generator	Thorium-232 proton irradiation	Radium-226 gamma irradiation	Radium-226 proton irradiation
Quality	✓	Ac-227 contamination	✓	✓
Quantity	Limited	Limited facilities	✓	✓
Scalability	Limited	Limited scalability	✓	✓
Reliability	✓	Long downtimes	✓	✓
Sustainability	✓	Long downtimes	To be evaluated	✓
Timing	Limited quantities available	Limited quantities available	In development	Available in 2024

<https://www.actineer.com/actinium-225/production-routes>



Запасы ^{229}Th : 12,8 ГБк (1623 мг)

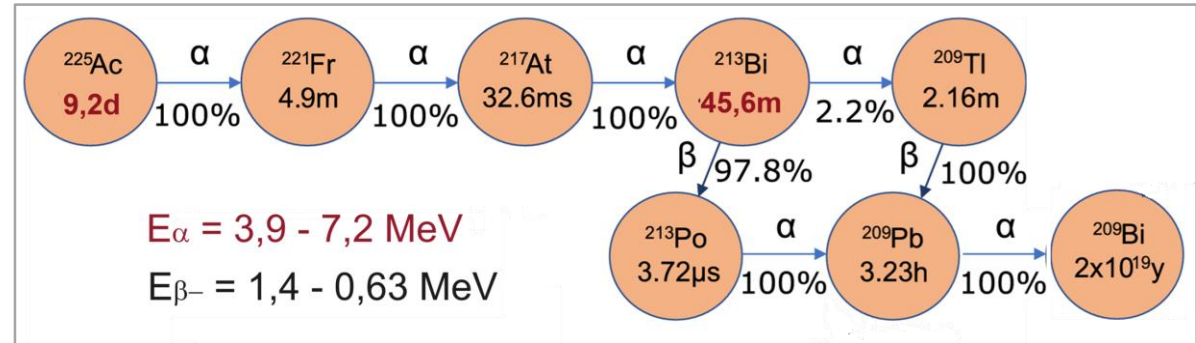
ORNL (США), JRC (ЕК, Германия), ФЭИ (РФ, Обнинск)

[Pharmaceuticals 16(2023)1679]

Мировое производство ^{225}Ac ~68 ГБк/год

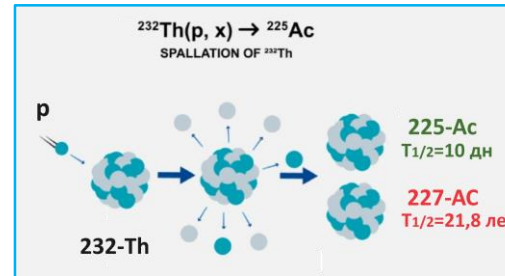
[Curr. Radiopharm. 2018, 11, 200–208]

4 до 50 МБк/доза, 1500 – 17000 пациентов/год



$E_{\alpha} = 3,9 - 7,2 \text{ MeV}$
 $E_{\beta^-} = 1,4 - 0,63 \text{ MeV}$

Расщепление ^{232}Th в реакции $^{232}\text{Th}(p,x)^{225}\text{Ac}$



$m(^{232}\text{Th})=5 \text{ г/см}^{-2}$, $E_p=0,6-2 \text{ ГэВ}$

$A(^{225}\text{Ac})$ 40 до 80 ГБк/10 дней, $t_{\text{рц}}=8 \text{ мес}$

[Radiochemistry, 53(2011)73]

[Appl. Radiat. Isotop 70(2012)2602]

Производство:

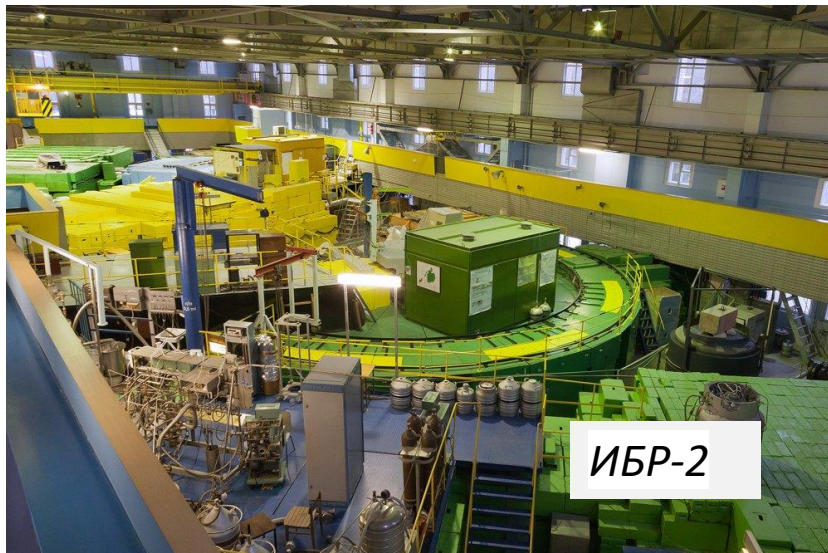
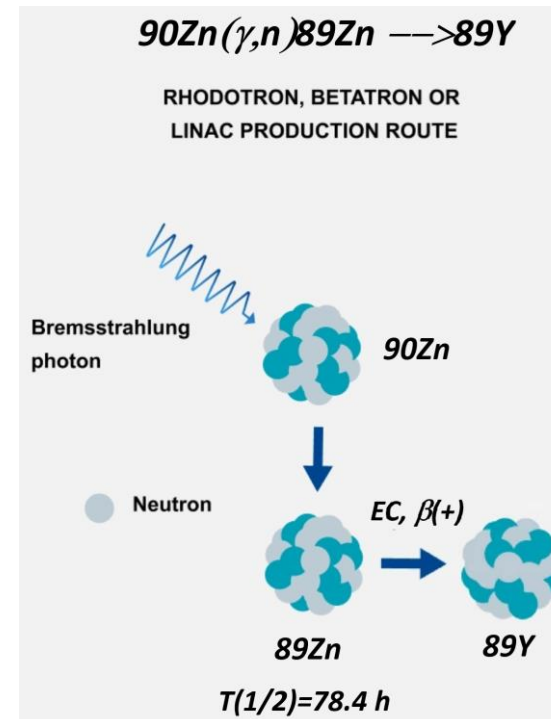
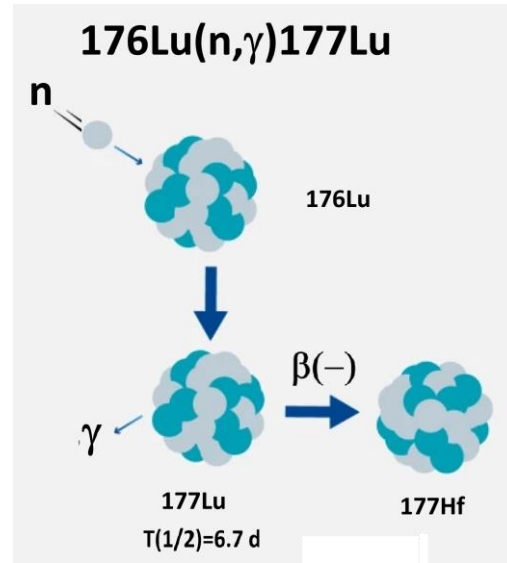
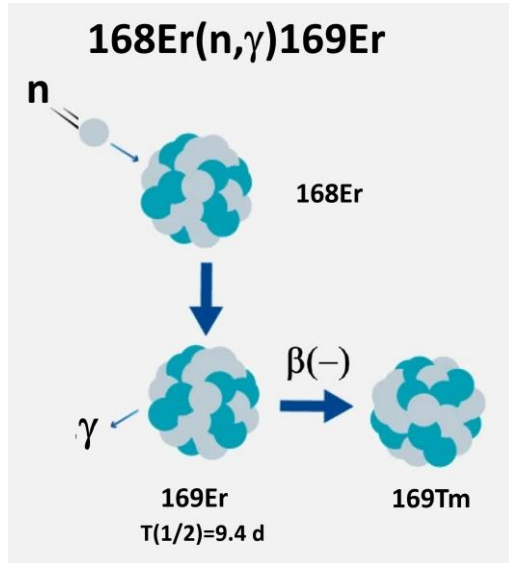
Tri-Lab: BNL (200 МэВ, 165 мкА), LANL (100 МэВ, 275 мкА), ORNL TRIUMF (500 МэВ, 165 мкА)
ИЯИ (160 МэВ, 120 мкА)

Недостаток: наработка ^{227}Ac ($T_{1/2} = 21,8 \text{ года}$) 0,1% -0,2%

Подходящий способ разделения смеси $^{225}, ^{227}\text{Ac}$ - ЭМ масс-сепарация

TRIUF и CERN-MEDICIS

Использование масс-сепаратора в качестве второй ступени очистки радиоизотопов к методу Сцилларда-Чалмерса (основан на отделении целевого радиоизотопа от вещества мишени за счет энергии отдачи).

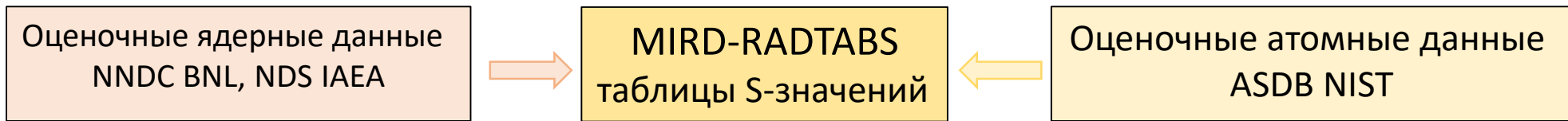


Мишенная оже-терапия находится на стадии доклинических исследований

Проблема: оценка внутриклеточной интегральной
(оже- + вторичные электроны) поглощенной дозы D (Гр)

Резолюция совещания МАГАТЭ по среднесрочным потребностям в ядерных данных для медицинских применений: *«Необходимо также разработать комплексный расчетный маршрут для определения энергий и вероятностей эмиссии низкоэнергетических рентгеновских лучей и оже-электронов с более высокой степенью детализации и последовательности, чем доступно в настоящее время»*
[Summary Report INDC(NDS)-0596, 2011]

MIRD (**M**edical **I**nternal **R**adiation **D**ose) - программы расчетов поглощенной дозы при единичном акте радиоактивного распада в клетке, S -значения (Гр/Бк) [Phys. Med. Biol., 62(2017)2239]



! S -значений - точное знание принятого спектра ионизирующего излучения

Расчетные выходы оже-электронов на акт распада ^{99m}Tc

^{99m}Tc		K total	L total	MXY	CK LLX	CK MMX	CK LLM	SupCK NNN	CK NNX
Energy, keV		15 - 20,3	1,7 - 2	0,18	0,144	0,104	0,054	0,014	0,012
Численные расчеты*	RADAR	2,07E-02	1,02E-01						
	DDEP	2,15E-02	1,09E-01						
	Eckerman	2,04E-02	1,04E-01	1,08E+00		7,09E-01			2,47E+00
	Howell	1,73E-02	1,21E-01	1,10E+00	1,93E-02	7,47E-01			1,98E+00
	Pomplun	1,92E-02	1,08E-01	1,12E+00	1,13E-02	3,49E-01			8,72E-01
	Lee	2,08E-02	1,24E-01	1,10E+00	9,48E-03	7,10E-01	9,30E-03	5,36E-01	8,45E-01

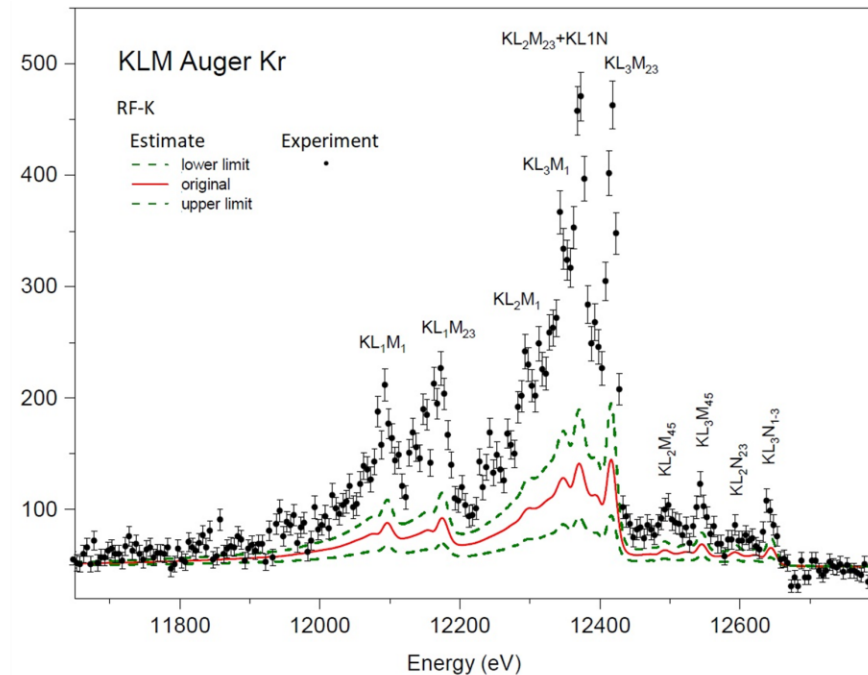
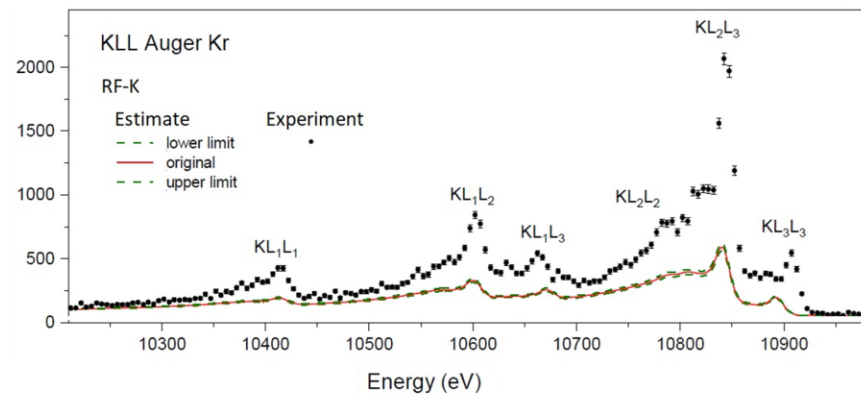
* отличаются
деталью
протокола расчетов

Применимость расчетов можно установить путем сравнения их с экспериментальными спектрами

Инструментально-методическая база НЭОЯСиРХ

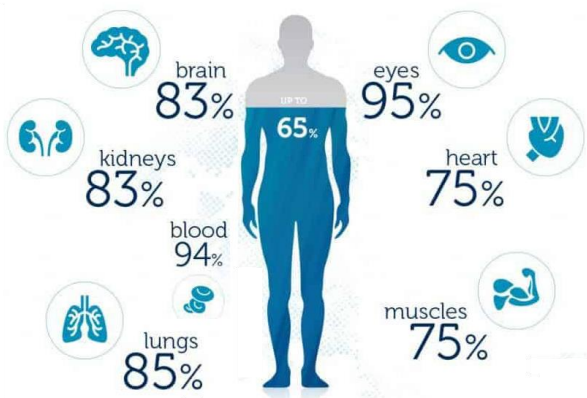
- ✓ Радиохимическая лаборатория
- ✓ Масс-сепаратор
- ✓ Спектрометр ESA-50, E_e от 0 до 50 кэВ, $\Delta E_{inst} = 3$ эВ
- ✓ Вычислительные ресурсы

Предварительные эксперименты в сотрудничестве с DNPh ANU (Австралия)



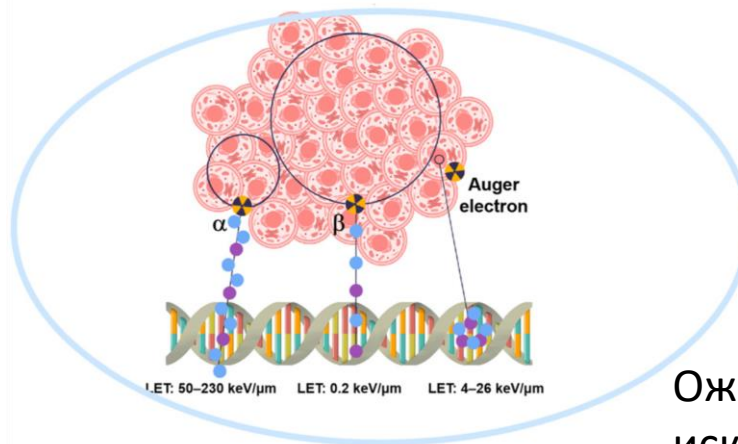
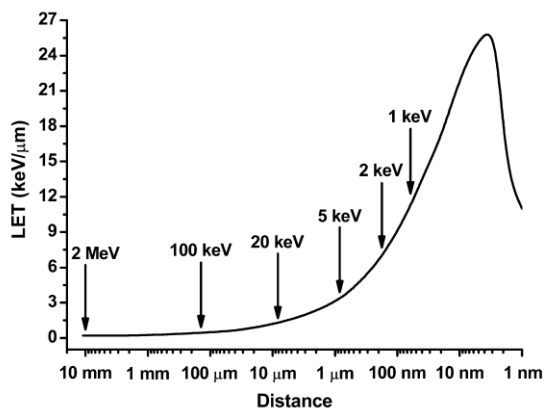
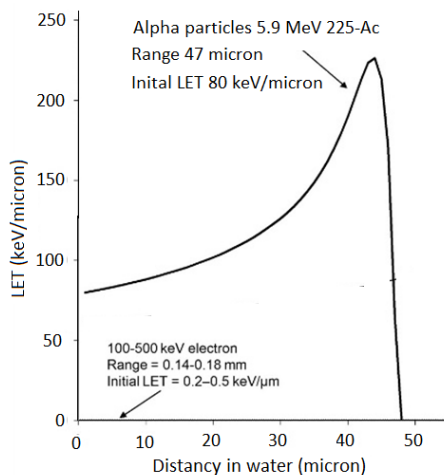
Спасибо за внимание!

Линейная передача энергии (ЛПЭ, кэВ/ед. длины) - интенсивность передачи энергии вдоль трека частицы в веществе. Пробег частицы λ в веществе биологической ткани.



Частица	ЛПЭ, кэВ/мкм	λ , мкм	$D_{\text{кл}}$, МКМ	$D_{\text{ДНК}}$, МКМ	$\lambda/D_{\text{кл}}$	$\lambda/D_{\text{ДНК}}$
α , 5 - 9 МэВ	230 - 80	40 - 100			3 - 8	$1,3 \cdot 10^4 - 3 \cdot 10^4$
β^- , 0,05 - 2,3 МэВ	$\sim 0,2$	$50 - 1,2 \cdot 10^4$	12	$3 \cdot 10^{-3}$	4 - 1000	$1,7 \cdot 10^4 - 4 \cdot 10^6$
Оже- электроны, эВ - 10 кэВ	26 - 4	$2 \cdot 10^{-3} - 0,5$			$1,7 \cdot 10^{-4} - 4 \cdot 10^{-2}$	$6,7 \cdot 10^{-1} - 1,7 \cdot 10^2$

[MC calculations in nuclear medicine. 2-nd ed. Chapt. 6, IOP PubLtd 2022]



Альфа-частицы - большой пробег $\lambda/D_{\text{кл}} \sim 3 - 8$, высокая плотностью ионизации вдоль трека

Оже-электроны - короткие сложно искривленные траектории, ионизация локализована в пределах проблемной клетки и даже ДНК

Неоспоримое преимущество оже-электронов – минимизация риска поражения соседних здоровых клеток