

Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ НАУКИ
ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК
(ИЯИ РАН)

УДК 539.1, 539.12, 621.384.6, 61

Рег. № 122041100019-3

Рег. №



УТВЕРЖДАЮ
Директор ИЯИ РАН,
чл.-корр. РАН

М.В. Либанов

«28» декабря 2024 г.

**ОТЧЕТ
О НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОЙ РАБОТЕ**

122041100019-3

МЕЖДИСЦИПЛИНАРНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, ПРИКЛАДНАЯ ЯДЕРНАЯ
ФИЗИКА, РАДИОИЗОТОПНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ, ЯДЕРНАЯ
МЕДИЦИНА, ПРОБЛЕМЫ ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ БЕЗОПАСНОСТИ,
ИНФОРМАЦИОННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ В ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ И
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКЕ

(итоговый за 2024 год)

ФЦП

Руководитель НИР,
Главный научный сотрудник,
чл.-корр. РАН

Л.В. Кравчук
«28» декабря 2024г.

Москва 2024 г.

СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ

Руководитель НИР,
гл. науч. сотр.,
член-корр. РАН,
д-р. физ.-мат. наук


_____ 28.12.2024 Л.В. Кравчук
подпись, дата (введение, заключение)

Исполнители:
Гл. науч. сотр.,
д-р. хим. наук


_____ 28.12.2024 Б.Л. Жуйков
подпись, дата (разделы 1-5)

Зав. лабораторией
д-р. физ.-мат. наук


_____ 28.12.2024 С.В. Акулиничев
подпись, дата (разделы 6-8)

Науч. сотр.,
канд. физ.-мат. наук


_____ 28.12.2024 А.А. Каспаров
подпись, дата (разделы 9-10)

Ст. науч. сотр.,
канд. физ.-мат. наук


_____ 28.12.2024 С.Г. Лебедев
подпись, дата (разделы 11-12)

Ст. науч. сотр.,
канд. физ.-мат. наук


_____ 28.12.2024 В.В. Казалов
подпись, дата (разделы 13-14)

Зам. директора,
д-р. физ.-мат. наук


_____ 28.12.2024 Г.И. Рубцов
подпись, дата (раздел 15)

Вед. науч. сотр.,
канд. физ.-мат. наук


_____ 28.12.2024 С.Ф. Сидоркин
подпись, дата (раздел 16)

Нормоконтроль


_____ 28.12.2024 О.Н. Либанова
подпись, дата

РЕФЕРАТ

Отчет 104 с., 1 кн., 64 рис., 2 табл., 54 источн., 1 прил.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ГЕНЕРАТОР РУБИДИЯ-82, ЭЛЮАТ, ЭЛЮЕНТ, РАДИОФАРМПРЕПАРАТ, ЯДЕРНАЯ МЕДИЦИНА, ТАРГЕТНАЯ ТЕРАПИЯ, ИЗОТОПНЫЕ ГЕНЕРАТОРЫ, АКТИНИЙ-225, ВИСМУТ-213, ТОРИЙ-226, ХРОМАТОГРАФИЯ, КОНФОРМНАЯ ЛУЧЕВАЯ ТЕРАПИЯ, ПРОТОННАЯ ТЕРАПИЯ, БРАХИТЕРАПИЯ, РАДИОАКТИВНЫЕ ИСТОЧНИКИ, ИТТЕРБИЙ, СРЕДСТВО ИНДИВИДУАЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ, РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНЫЕ СВОЙСТВА, ИСПЫТАТЕЛЬНЫЙ СТЕНД, ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ЭЛЕМЕНТОВ, ГАММА-ПОГЛОЩЕНИЕ, ХАРАКТЕРИСТИЧЕСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ, КОМПОЗИЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ, НАНОГРАФИТ, ЭЛЕКТРО-МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА, НЕЙТРОННЫЕ ДЕТЕКТОРЫ, ФОН ОТ РАДОНА И ДОЧЕРНИХ ПРОДУКТОВ, ВАРИАЦИИ СОДЕРЖАНИЯ РАДОНА В ВОЗДУХЕ, ИМПУЛЬСНАЯ ИОННАЯ ИОНИЗАЦИОННАЯ КАМЕРА, ВЫХОД РАДОНА ИЗ СТЕН ПОМЕЩЕНИЯ, МЕТОД ОПТИМИЗАЦИИ НЕЛДЕРА-МИДА, TELESCOPE ARRAY, ДОЛГОВРЕМЕННЫЙ МОНИТОРИНГ ADS, ИНТЕНСИВНЫЕ ИСТОЧНИКИ НЕЙТРОНОВ И МИШЕНИ ПРОТОННЫХ УСКОРИТЕЛЕЙ.

В отчете представлены результаты научных работ в 2024 году по широкому кругу междисциплинарных исследований, среди которых разработка циркулирующего $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ генератора для прямого синтеза меченых соединений, изучение сорбции Bi(III) смолой Sephadex G-25 из нейтральных растворов NaCl , усовершенствование способа получения ^{225}Ac и других α -излучающих радионуклидов, улучшение параметров генератора рубидия-82, получение натрия-22 и разработка на его основе источников радиоактивного излучения, протонная флэш-терапия, комплексные испытания радиационно-защитных материалов, исследование аномального электромагнетизма в углеродных конденсатах, разработка перспективных методов детектирования нейтронов и протонов, поиск вариаций потока тепловых нейтронов в подземной лаборатории НЛГЗ-4900 в БНО ИЯИ РАН, создание высокочувствительных мониторов содержания радона, разработан алгоритм реконструкции событий наземной решетки Обсерватории Telescope Array, предложения по созданию стенда ADS – системы. План работ на 2024 год выполнен полностью. Получены значимые научные результаты, перечисленные в основном описании и заключении.

СОДЕРЖАНИЕ

СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ.....	2
РЕФЕРАТ	3
СОДЕРЖАНИЕ.....	4
ВВЕДЕНИЕ.....	6
1. Модернизация генератора рубидия-82 и изучение режимов его эксплуатации.....	15
1.1. Влияние ГДО на рН жидкой фазы	15
1.2. Влияние сорбента на рН жидкой фазы	15
1.3. Катионный обмен при приготовлении сорбента и зарядке генератора.....	18
2. Разработка циркулирующего $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ генератора для прямого синтеза меченых соединений.....	20
2.1. Эксперименты по связыванию висмута с ДОТА и ДОТА-Substance P.....	22
2.1.1. Статика.....	22
2.1.2. Динамика.....	28
3. Изучение экстракционных и хроматографических методов разделения Ti(IV) и Sc(III) для разработки генераторных схем получения ^{44}Sc	31
3.1. Разделение Ti(IV) и Sc(III) методами жидкость-жидкостной экстракции	31
3.1.1. Д2ЭГФК	31
3.1.2. Аликват 336.....	33
3.1.3. ТБФ.....	33
3.1.4. ТОФО	35
3.2. Разделение Ti(IV) и Sc(III) методами экстракционной хроматографии.....	37
3.2.1. Сорбент на основе Д2ЭГФК.....	38
3.2.2. Сорбент на основе аликуата 336	38
3.2.3. Очистка ^{44}Sc от оксалат-анионов	38
4. Разработка новой высокопродуктивной ториевой мишени для получения актиния-225 на пучке протонов линейного ускорителя ИЯИ РАН	41
5. Получение натрия-22 для изготовления источников радиоактивного излучения	48
6. Дозиметрия высокоинтенсивного протонного излучения	49
6.1. Юстировка системы пассивного формирования	49
6.2. Дозиметрия в водном фантоме	51
6.3. Черенковский монитор.....	54
7. Подготовка и планирование равномерного облучения биологических объектов в ходе радиобиологических исследований	56

8.	Облучение и анализ реакции биологических объектов	58
9.	Комплексные испытания радиационно-защитных материалов	62
9.1.	Безопасные испытания материала СИЗ ионизирующим излучением	62
9.2.	Имитация радиоактивного загрязнения для оценки дезактивируемости СИЗ	63
10.	Активационные испытания многокомпонентных материалов.....	65
10.1.	Спектрометрия рентгеновского излучения радиационно-защитных материалов	65
11.	Исследование аномального электромагнетизма в углеродных конденсатах	67
11.1.	Сверхпроводящие корреляции в графитовых пленках	67
12.	Разработка перспективных методов детектирования нейтронов и протонов	77
12.1.	Монитор нейтронного потока для реактора ПИК.....	77
13.	Поиск вариаций потока тепловых нейтронов в подземной лаборатории НЛГЗ-4900 в БНО ИЯИ РАН, связанных с солнечными и лунными приливными эффектами, метеорологическими условиями, сейсмической активностью в регионе.....	80
14.	Тестовый низкофоновый сцинтилляционный детектор для контроля содержания радона в воздухе.....	83
14.1.	Описание монитора радона с низкофоновым сцинтилляционным детектором ...	83
14.2.	Измерение содержания радона в воздухе сцинтилляционным детектором.....	84
15.	Разработка программы реконструкции событий наземной решетки эксперимента Telescope Array.....	87
16.	Определение возможного места ADS в атомной энергетике в сравнении с быстрыми реакторами и гибридными термоядерными реакторами и трансмутация минорных актиноидов. Разработка каскадной подкритической сборки, с разделительной системой, обеспечивающей одностороннюю связь между двумя ее составляющими, которая может быть использована в энергетических ADS в условиях долговременной работы	88
	ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....	90
	СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ.....	97
	ПРИЛОЖЕНИЕ А Список публикаций исполнителей отчета за 2024 г.	101

ВВЕДЕНИЕ

1. Задача «Улучшение параметров генератора рубидия-82».

Цель работы – создание наукоемких изделий – медицинских генераторов радионуклидов для терапии и диагностики ряда социально значимых заболеваний. В ИЯИ РАН ранее были предложены уникальные подходы и разработаны генераторы рубидия-82 (позитронно-эмиссионная томография, диагностика сердца и сосудов) и висмута-213 (альфа-терапия онкологических заболеваний). Необходима работа по изучению и оптимизации предложенных систем. Кроме того, перспективным является разработка нового генератора скандия-44 (позитронно-эмиссионная томография).

Генератор рубидия уже может использоваться в клинике, то есть является действующей разработкой, которая требует более фундаментального исследования химических процессов сорбции и десорбции рубидия и материнского стронция. Изучено влияние сорбента на значение рН раствора элюента, а также установлен механизм катионного обмена при приготовлении сорбента и зарядке генератора. Имеющийся научно-технологический задел позволяет при наличии соответствующих производственных мощностей организовать массовое производство генераторов рубидия-82 в Российской Федерации.

2. Задача «Разработка циркулирующего $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ генератора для прямого синтеза меченых соединений».

Предложенный генератор висмута по принципу своей работы является уникальной разработкой российских ученых, позволяющей экспрессно получить продукт высокого качества. Используется двухколоночный подход в режиме циркуляции элюента, что приводит к пространственному разделению материнского и дочернего радионуклидов, и позволяет получать готовый радиофармацевтический препарат, совмещая стадию мечения с десорбцией. Проведено системное исследование хелатирования висмута-213 в присутствии сорбента на основе декстрана, используемого в генераторе, а также мечения пептида Substance P, специфического глиомам, в тех же условиях.

3. Задача «Изучение экстракционных и хроматографических методов разделения Ti(IV) и Sc(III) для разработки генераторных схем получения ^{44}Sc ».

С целью разработки генератора скандия-44 систематически изучена жидкость-жидкостная экстракция титана-44 и скандия-44 из растворов соляной и азотной кислот различной концентрации с использованием известных экстрагентов, таких как Аликват 336 (хлорид метилтриоктиламмония), Д2ЭГФК (ди(2-этилгексил)фосфорная кислота), ТБФ (трибутилфосфат) и ТОФО (три-н-октилфосфиноксид) и исследовано поведение ^{44}Ti и ^{44}Sc

на экстракционно-хроматографических материалах на основе указанных экстрагентов, таких как TEVA Resin и LN Resin.

4. Задача «Разработка новой высокопродуктивной ториевой мишени для получения актиния-225 на пучке протонов линейного ускорителя ИЯИ РАН».

Разработан способ изготовления высокопродуктивной ториевой мишени в ниобиевой оболочке для получения актиния-225 и других медицинских радионуклидов. Определенный режим диффузионной сварки тория и ниобия обеспечивает хороший контакт поверхностей и возможность облучать высоким током протонов на линейном ускорителе ИЯИ РАН и на других ускорителях.

5. Задача «Получение натрия-22 с целью получения радиоактивных источников для научных исследований, промышленности и медицины».

Провести работы по получению радионуклида натрия-22 с целью изготовления источников монохроматического гамма-излучения для нужд российской промышленности, а также для изготовления источников позитронов и гамма-квантов, используемых в научных исследованиях. Разработать новую алюминиевую мишень, которая позволит оптимизировать процесс получения натрия-22 на пучке протонов с энергией до 160 МэВ.

6. Задача «Дозиметрия высокоинтенсивного протонного излучения».

Качественная дозиметрия является ключевым элементом радиобиологических исследований. Контроль подводимой дозы является основополагающим для установления дозозависимых эффектов на биологические системы. Биологический эффект ионизирующего излучения является функцией нескольких параметров, включая тип излучения, энергию частиц, мощность дозы, пространственное распределение поглощённой энергии (дозиметрическая неоднородность) и время облучения.

На ускорителе ИЯИ РАН имеется возможность использовать максимально широкий диапазон средней мощности дозы \dot{D} , от конвенционального режима с $\dot{D} < 3$ Гр/с до одноимпульсного FLASH (сокращенно - SPLASH от single-pulse FLASH) режима с $\dot{D} > 10^4$ Гр/с. Широкий спектр оборудования используется коллективом ЛМФ для обеспечения дозиметрического контроля протонного пучка на входе в процедурную КПП и результирующего пучка по мере его прохождения через элементы системы пассивного формирования. Условно решаемы задачи можно разделить так:

6.1. Юстировка системы пассивного формирования.

В ходе работы предложена и опробована методика упрощения процедуры поиска оптимального угла поворота гребчатого фильтра. Это позволило существенно сократить время и количество измерений, требуемых для отладки корректного положения системы пассивного формирования.

Также впервые опробована процедура получения протонной радиограммы при помощи рентгеновских цифровых кассет Agfa CRMD 4.0. Пластины позволяют быстро получать цифровое изображение структур, находящихся между выводом пучка и пластиной. Ожидается, что такая технология сильно упростит процедуру центрирования по оси пучка фигурного рассеивателя.

6.2. Дозиметрия в водном фантоме.

Ионизационные камеры, обычно используемые для абсолютной и относительной дозиметрии протонных и других пучков ускоренных частиц, проблематично применять при очень высоких интенсивностях пучков из-за нарушения линейности их отклика. Более адекватным для дозиметрии во FLASH-терапии считается использование радиохромных плёнок. Тем не менее, применение радиохромных плёнок в протонной терапии требуют дополнительного изучения с точки зрения возможной зависимости их показаний от характеристик пучков, в том числе от линейной передачи энергии (ЛПЭ).

Проведена работа по оценке точности дозиметрии протонных пучков плёночными детекторами в широком диапазоне мощностей доз.

6.3. Черенковский монитор.

Радиохромные плёнки, достоинства и недостатки которых подробно описаны в пункте 1.2, непригодны для контроля подводимой дозы в режиме реального времени, так как достоверный результат поглощённой дозы можно получить только спустя 24 часа после облучения, что соответствует условиям калибровки. Индукционные датчики тока хорошо работают в области больших импульсных токов, однако их показания могут искажаться вкладом низкоэнергетического магнитного фона, а также эти детекторы обычно не дают информацию о положении пучка.

Нашим коллективом разработан позиционно-чувствительный монитор, работающий в широком диапазоне интенсивностей и длительностей импульса протонного пучка. Монитор позволяет измерять в online режиме временную структуру, число протонов и положение центра пучка в каждом отдельном импульсе протонного пучка.

В ходе научно-исследовательской работы проведена оценка линейности показаний индукционного датчика тока и черенковского монитора, а также сделан вывод о возможности применения черенковского монитора в протонной флэш-терапии.

7. Задача «Подготовка и планирование равномерного облучения объектов в ходе радиобиологических исследований».

Учитывая то, что воздействие протонов в различных режимах может вызывать различные реакции организма, доклиническое исследование должно включать облучение живых биологических моделей. Очевидно, что это позволит получить более полное

представление о механизмах действия и эффективности данного подхода к лучевому лечению злокачественных новообразований. В качестве биологической модели органогенеза и дифференцировки тканей могут выступать оплодотворенные яйца теплокровных позвоночных животных, в частности яйца перепела. Относительно малый размер перепелиного яйца позволяет размещать сборки из нескольких образцов в область модифицированного пика Брэгга (МПБ), тем самым обеспечивая более надежную статистику результатов.

Подготовка экспериментов по облучению биологических моделей в протонном пучке должна включать в себя определение и контроль оптимальных условий его проведения. Следует предварительно произвести расчет системы формирования дозового поля, дозиметрическую проверку воспроизведения результатов вычислений на лучевой установке, а также в процессе проведения эксперимента следует производить дозиметрический контроль лучевой нагрузки на облучаемые образцы.

Задача состояла в подготовке и проведении экспериментов по облучению протонами в режимах флэш-терапии на ускорителе ИЯИ РАН биологических моделей на примере оплодотворенных яиц японского перепела (*Coturnix japonica*). Работа включает оценку результатов компьютерной симуляции установки ИЯИ РАН, осуществленной с использованием библиотек Geant4.

8. Задача «Облучение и анализ реакции биологических объектов».

В ходе научно-исследовательской работы были получены результаты облучения опухолевых (HT-29 – колоректальная аденокарцинома человека) и нормальных (ADSC – мезенхимальные стволовые клетки жировой ткани человека фибробласты) клеточных культур в нескольких режимах в области модифицированного пика Брэгга (SOBP). Основные режимы облучения: конвенциональный режим (мощность дозы $\dot{D} < 3$ Гр/с), флэш-режим ($\dot{D} \sim 100$ Гр/с) и одноимпульсный флэш-режим ($\dot{D} > 104$ Гр/с). Динамика репликации ДНК после облучения отслеживалась в течение 5 суток с использованием EdU-теста. Оценка доли апоптотических/некротических клеток производилась в течение 2 суток после облучения с использованием флуоресцентного микроскопа.

9. Задача «Комплексные испытания радиационно-защитных материалов».

В 1984 года в ИЯИ РАН под руководством Бориса Алексеевича Бенецкого (1933-2015 гг.) началась работа по созданию средств индивидуальной защиты (СИЗ) от ионизирующих излучений (см. работу [1]). Исходными стали медицинские данные о лечении острой лучевой болезни моряков атомной подводной лодки К-19, получивших высокие дозы облучения при ликвидации аварии ядерной энергетической установки (4.07.1961). Анализ аварийных радиационных полей, медицинских данных, исследования

свойств защитных материалов показали целесообразность применения СИЗ как дополнительного к фактору времени средства защиты, снижающего дозовую нагрузку на организм человека. При неконтролируемом аварийном повышенном облучении такие СИЗ могут оказаться единственным средством спасения жизни людей. Благодаря сотрудничеству специалистов различных областей знания при ведущем научном сопровождении ИЯИ РАН была создана новая отрасль промышленности по производству новых СИЗ. В настоящее время на российском предприятии ОАО «ПТС» (см. работу [2]) серийно выпускается третье поколение СИЗ типа «РЗК» (ТУ 8570-047-38996367-2004), которое введено в нормы снабжения сотрудников МЧС. Параметры радиационно-защитных свойств «РЗК» вошли в ГОСТ Р 53264-2019 (см. работу [3]). Сотрудничество ИЯИ РАН и ОАО «ПТС» продолжается, при этом признаётся лидирующее положение ИЯИ РАН в разработке систем и методик контроля радиационно-защитных свойств композиционных материалов, используемых для изготовления спецодежды.

10. Задача «Активационные испытания многокомпонентных материалов».

На предприятиях ядерной энергетики применяются индивидуальные радиационно-защитные средства, для изготовления которых используются усовершенствованные многокомпонентные материалы с улучшенными радиационно-защитными средствами (см. работу [4]). При исследовании характеристик этих материалов необходимо развивать новые спектрометрические и дозиметрические радиоактивные методы измерения и неразрушающего контроля функциональных свойств радиационно-защитных материалов (РЗМ). Такие методы позволяют измерять интенсивность поглощенного и рассеянного радиоактивного излучения компонентами анализируемого материала при определении его состава и концентрации по спектрам собственного излучения вещества в материале. По поглощению радиоактивного излучения вторичного излучения, возникающего при взаимодействии нейтронов, β - и γ -излучений с веществом можно определять распределение компонентов в материале. Радиоактивные методы широко применяются для экспертного анализа многокомпонентных сред.

Целью работы является разработка новых методов, средств измерения и неразрушающего контроля функциональных характеристик материалов при помощи гамма-, бета-, нейтронного и рентгеновского излучений для улучшения эксплуатационных свойств РЗМ. В работе используются спектрометрические и дозиметрические радиоактивные методы измерения поглощения и рассеяния гамма-, бета- нейтронного и характеристического рентгеновского излучений компонентами анализируемого вещества от закрытых лабораторных радионуклидных источников ^{57}Co и $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$ и импульсные пуски нейтронов. С помощью гамма-спектрометрического комплекса СКС-07П-Г41 и

радиометра МКС-01Р можно определять коэффициенты поглощения β - и γ -излучений анализируемым материалом, элементный и количественный состав поглощающей компоненты материала радиационно-защитного костюма (см. работу [5]).

11. Задача «Исследование аномального электромагнетизма в углеродных конденсатах».

Объектами исследования являются графитовые пленки.

Цель работы – разработка новых перспективных материалов и приборов. В 2024 г. изучались другие сверхпроводящие корреляции в НГ пленках:

- скачок сопротивления при критическом токе и попытка его объяснения за счет сверхпроводящего перехода в моменте скачка сопротивления;
- наблюдение линейчатой структуры энергетических уровней магнитных вихрей и лавин магнитного потока вблизи момента скачка сопротивления;
- существование смешанной сверхпроводящей фазы в интервале температур до 650К и возможность снижения энерговыделения в материалах при покрытии их слоем НГ пленки.

По результатам указанных исследований подготовлены к публикации статья в «Журнале технической физики», статья в журнале «Инноватика и экспертиза», статья в журнале «Journal of Superconductivity and Novel Magnetism», выполнены два доклада на международных конференциях: 9th International Conference on Superconductivity and Magnetism ICSM2024 “Hunts for a Superconductive Phase in Nanographite Films” и International Conference on Advanced Functional Materials “Possibility of superconductive phase in nanographite films”, а также получен патент РФ на изобретение № 2825236 «Способ получения графитового токоограничителя большой мощности».

12. Задача «Разработка перспективных методов детектирования нейтронов и протонов».

Объектами исследования являются радиохимические методы детектирования нейтронов и протонов. Цель работы – разработка новых перспективных материалов и приборов. Результат работы по задаче 2 – разработка нейтронного монитора для реактора ПИК. Соответствующая статья “Point-Like Neutron Monitor for the High-Flux Nuclear and Thermonuclear Reactors” принята к публикации в журнале Journal of Applied Surface Science, а также подготовлена заявка на патент РФ № 2024120601 «Способ мониторинга нейтронного потока в высокопоточных ядерных установках». В рамках других работ был разработан миниатюрный «точечноподобный» нейтронный монитор для реактора ПИК, который может помещаться в экспериментальном канале реактора ПИК. По результатам принята к публикации статья “Point-Like Neutron Monitor for the High-Flux Nuclear and Thermonuclear Reactors” в журнале Journal of Applied Surface Science.

13. Задача «Поиск вариаций потока тепловых нейтронов в подземной лаборатории НЛГЗ-4900 в БНО ИЯИ РАН, связанных с солнечными и лунными приливными эффектами, метеорологическими условиями, сейсмической активностью в регионе».

Вариации концентрации радона в воздухе, как один из ряда факторов, предшествующих землетрясениям или сопровождающих их, изучаются более двадцати лет. Обычно для измерения концентрации радона в воздухе используют детекторы, регистрирующие α -частицы от распада ^{222}Rn и его дочерних ядер, β -частицы и γ -кванты от распадов дочерних продуктов радона. Земная кора является возможным источником нейтронов, образующихся в (α, n) -реакциях при распаде радиоактивных газов радона и торона. В работе [6] в качестве ещё одного метода измерения вариаций концентрации радона в поверхностном слое грунта предложено регистрировать тепловые нейтроны, рождающиеся в (α, n) -реакциях на ядрах элементов, входящих в состав грунта, и частично выходящих в приземный слой воздуха. Также в этой работе показана корреляция между потоком тепловых нейтронов из грунта и приливными эффектами в земной коре. Там же показано повышение потока тепловых нейтронов из грунта в преддверие сейсмической активности вблизи места расположения детектора. Кроме того, поток нейтронов в подземных лабораториях является критическим фактором при оценке фона в низкофоновых экспериментах, таких как эксперименты по поиску двойного бета-распада, поиск темной материи и т. д.

14. Задача «Тестовый низкофоновый сцинтилляционный детектор для контроля содержания радона в воздухе».

В практике проведения низкофоновых экспериментов заметное место занимает проблема выявления и устранения летучей компоненты радиоактивного фона, создаваемого распадами ^{222}Rn и его дочерних продуктов (д.п.р.) в воздушной среде. ^{222}Rn является промежуточным радиоактивным летучим изотопом радиоактивного ряда ^{238}U . Центральным элементом системы контроля фоновых характеристик воздушной среды является детектор активности радона. Оптимальным представляется детектор, использующий воздух в качестве рабочего вещества. Он должен обладать достаточно большим объёмом для обеспечения высокой чувствительности и хорошим энергетическим разрешением для того, чтобы разделить пики α -частиц от распада ^{222}Rn и дочерних ^{218}Po , ^{214}Po и других α -активных изотопов, одновременно присутствующих в пробе. В Баксанской нейтринной обсерватории ИЯИ РАН была разработана цилиндрическая воздушная импульсная ионная ионизационная камера (ЦВИК) с пониженным уровнем микрофонного шума [7]. В лабораторных условиях ЦВИК имеет разрешение 1,7% для α -частиц с энергией

5,49 МэВ. С её помощью проведён ряд измерений содержания ^{222}Rn в воздухе различных объектов БНО ИЯИ РАН. Результаты этой работы представлены в [8].

Анализ опыта долговременной непрерывной работы с установкой, содержащей ЦВИК, показал, что для достижения высоких значений энергетического разрешения необходим практически постоянный контроль технического состояния всех систем монитора и регулярная их профилактика. Для такого обслуживания требуется отдельный квалифицированный специалист-физик. При использовании подобного устройства в составе обычной инженерно-технической инфраструктуры время его качественной работы ограничивается несколькими неделями. Представляется, что в случае, когда показатель энергетического разрешения мало влияет на конечный результат измерения активности радона в воздухе, например, при интегральных измерениях скорости распада радона по β - и γ -излучению дочерних продуктов, монитор может быть сделан более неприхотливым.

Ниже приводятся предварительные результаты изучения возможностей наземной низкофоновой установки со сцинтилляционным детектором для создания подобного монитора.

15. Задача «Разработка программы реконструкции событий наземной решетки эксперимента Telescope Array».

Космические лучи с энергиями выше 1 ЭэВ – это преимущественно заряженные частицы, представляющие собой протоны или ядра химических элементов. В число этих частиц могут входить фотоны и нейтрино ультравысоких энергий, их поиск представляет собой важную задачу несмотря на достаточно сильные ограничения на поток таких частиц, полученные в экспериментах Pierre Auger и Telescope Array. Наблюдение космических лучей ультравысоких энергий осуществляется с помощью регистрации широких атмосферных ливней (ШАЛ), вызванных этими частицами в атмосфере Земли, с помощью наземных установок большой площади. В силу того, что в эксперименте записывается сигнал, вызванный вторичными частицами, восстановление параметров первичной частицы представляет собой важную и актуальную задачу. Среди восстанавливаемых параметров наибольший интерес представляют те, которые позволяют оценить тип первичной частицы.

16. Задача «Определение возможного места ADS в атомной энергетике в сравнении с быстрыми реакторами и гибридными термоядерными реакторами и трансмутация минорных актиноидов. Разработка каскадной подкритической сборки, с разделительной системой, обеспечивающей одностороннюю связь между двумя ее составляющими, которая может быть использована в энергетических ADS в условиях долговременной работы».

Данная задача пересекается с задачами создания мощных источников нейтронов на основе сильноточных протонных ускорителей в плане разработки мишеней, а ADS является некой альтернативой быстрым реакторам.

1. Модернизация генератора рубидия-82 и изучение режимов его эксплуатации

В рамках поставленной задачи было продолжено изучение механизма химических процессов при приготовлении сорбента из гидратированного диоксида олова (ГДО) по разработанной в ИЯИ РАН методике, а также при клиническом применении генератора рубидия-82, т.е. при длительном динамическом контакте сорбента с изотоническим раствором (0,9% NaCl или 0,15 М NaCl).

1.1. Влияние ГДО на pH жидкой фазы

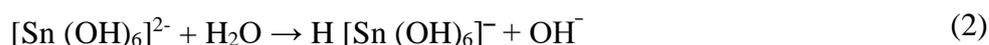
При контакте с ГДО pH обессоленной воды и растворов хлорида натрия уменьшается. Причем в обессоленной воде уменьшение pH воды меньше, чем в растворах хлорида натрия: при увеличении содержания хлорида натрия с 0 М до 2 М концентрация катионов водорода в растворе увеличивается на 30 мкМ (с 30 мкМ до 60 мкМ при массовом соотношении твердой и жидкой фаз 1:170).

1.2. Влияние сорбента на pH жидкой фазы

В отличие от ГДО сорбент на его основе повышает pH обессоленной воды с нейтрального значения до 10-10,5 из-за образования донора гидроксильных ионов при приготовлении сорбента из ГДО на его поверхности. Вещество, ответственное за повышение pH, относится к классу гексагидроксистеранатов (ГГС), образуемому по реакции (1) при обработке ГДО слабощелочным раствором:



которое в результате гидролиза повышает pH жидкой фазы (см. реакции (2) и (3)):



Образование ГГС (в генераторе рубидия-82 это гексагидроксистеранат натрия, ГГСН), повышающего pH обессоленной воды с 6,7 до 10-10,5, а также то, что значение pH не зависит от наличия в растворе ГГСН хлорида натрия (до контакта с сорбентом) иллюстрирует график 1 на рисунке 1.1. График 2 на рисунке 1.1 указывает на то, что уменьшение pH раствора ГГСН происходит только при контакте с сорбентом и наличии в растворе хлорида натрия. График 3 на рисунке 1.1 указывает на то, что именно в сорбенте находятся вещества, оказывающие противоположное влияние на pH жидкой фазы (ГГСН и хлорида натрия).

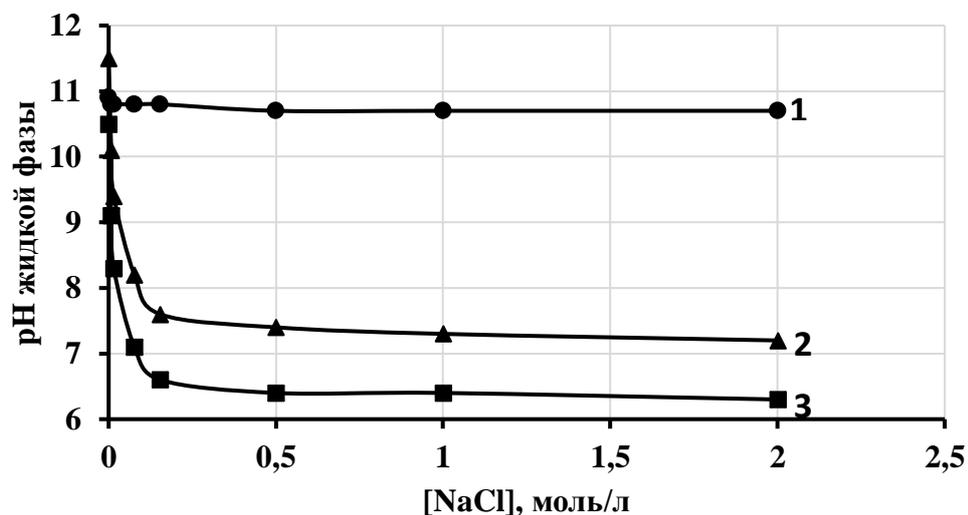


Рисунок 1.1 – Влияние NaCl и сорбента на pH обессоленной воды и растворов ГГСН ($\text{Na}_2\text{SnO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ или $\text{Na}_2[\text{Sn}(\text{OH})_6]$): 1 – ● – раствор ГГСН до контакта с сорбентом; 2 – ▲ – раствор ГГСН после контакта с сорбентом; 3 – ■ – вода после контакта с сорбентом

Соединение, увеличивающее pH жидкой фазы («донор» гидроксильных ионов) затем расходуется при его использовании в генераторе рубидия-82. Это видно из графика 2 на рисунке 1.2. Из графика 2 на рисунке 1.2 следует также, что несмотря на интенсивный расход «донора» гидроксильных ионов при длительном элюировании элюента (изотонический раствор (0,9% NaCl)), pH элюата из генератора остается постоянным даже при прохождении через стандартную генераторную колонку с массой сухого сорбента 3,8 г нескольких десятков литров элюента. При этом за время эксплуатации генератора со стандартной генераторной колонкой из каждого грамма сухого сорбента поступает в жидкую фазу (элюат) около 1 ммоль OH^- .

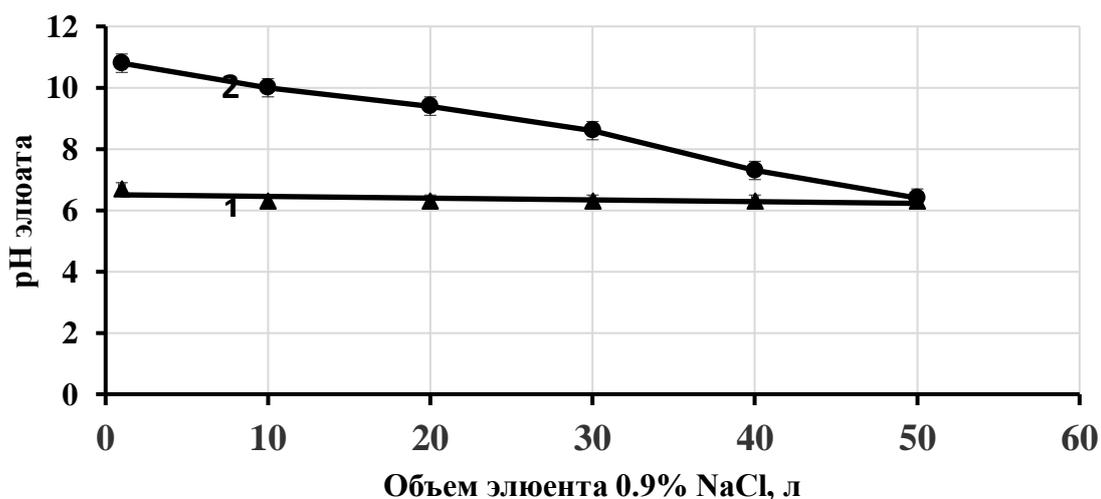
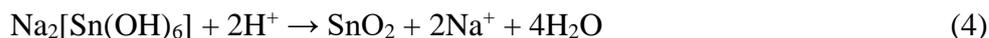


Рисунок 1.2 – Изменение pH элюата: 1 – ▲ – эксплуатационный режим элюирования (элюент 0,9% NaCl, pH 6,1); 2 – ● – тестовый режим элюирования (элюент 0,1 мМ HCl, pH 4). Масса сухого сорбента 3,8 г. Скорость элюирования 5 мл/мин. Тестовые измерения проводили после элюирования 10 л элюента (0,9% NaCl, pH 6,1)

Причем при концентрации хлорида натрия от 0,15 М до 2 М рН раствора близок к нейтральным значениям и практически не меняется. Это значит, что концентрация H^+ и OH^- в жидкой фазе становится одинаковой, благодаря чему рН жидкой фазы (элюат) становится нейтральным при использовании изотонического раствора (0,15 М NaCl). Поэтому, как нами было установлено, при использовании в качестве элюента раствора 0,15 М NaCl объем элюата с нейтральным значением рН зависит от рН элюента. Это иллюстрирует рисунок 1.3, на котором представлены графики изменения рН элюата при элюировании элюента (изотонический раствор 0,15 М NaCl с диапазоном рН 3,75-6,4) через стандартную генераторную колонку. Верхняя и нижняя границы диапазона рН элюата, в котором достигается максимально эффективное разделение рубидия-82 от стронция-85 и стронция-82, указаны штрихпунктирными линиями. Видно, что объем элюата с такими значениями рН тем больше, чем выше рН элюента: так, например, если использовать элюент с рН 3,75 можно получить лишь около 3 л такого элюата, то при использовании элюента с рН 4,55 – около 9-10 л, а при рН элюента 5,9-6,4 – не менее 50 л такого элюата. Влияние кислоты связано с тем, что ГГС разрушаются в кислой среде:



Реакция (4) реализуется, в частности, при клиническом применении, если используется слабокислый элюент (изотонический раствор). Реакция (5) характерна для случая длительного хранения негерметично закрытого генератора рубидия-82 и описывает процесс разрушения ГГСН при контакте с углекислым газом воздуха, в результате чего создается кислая среда.

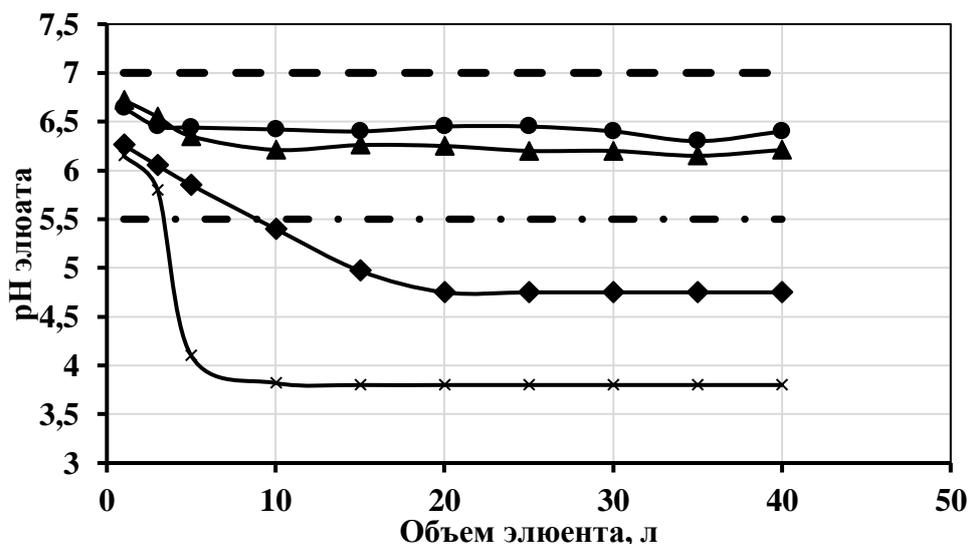


Рисунок 1.3 – Зависимость рН элюата от рН элюента (0.9% NaCl). Скорость элюирования 5 мл/мин.: — — — - верхняя допустимая граница рН; — ● — ● — - нижняя допустимая граница рН; X – рН 3,75; ◆ - рН 4,55; ▲ - рН 5,9; ● - рН 6,4

1.3. Катионный обмен при приготовлении сорбента и зарядке генератора

Катионный обмен на ГДО и сорбенте на его основе играет важнейшую роль как при приготовлении сорбента, зарядке генератора (нанесение активности на сорбент), так и при клиническом применении.

Установлено, что хлорид натрия (катионы натрия) является предшественником практически всех протонов, образующихся в результате катионного обмена водородной (кислотной) формой ГДО (ГДО-Н⁺) по реакции:



Показано, что уменьшение рН в этом случае происходит почти исключительно за счет протонов, образующихся при контакте раствора с сорбентом по реакции (6). Эффективность этого процесса при контакте с сорбентом почти в 11 раз выше, чем при контакте с ГДО: при увеличении концентрации хлорида натрия с 0 М до 2 М концентрация ионов водорода при контакте с сорбентом увеличивается на 320 мкМ, в то время как при контакте с ГДО – только на 30 мкМ. Такое различие объясняется тем, что катионный обмен происходит эффективнее в щелочной среде (сорбент), чем в кислой (ГДО).

Катионный обмен происходит на стадии зарядки генератора рубидия (нанесение активности в виде катионов стронция-82 и стронция-85).

На примере растворов хлоридов элементов 1А и 2А подгрупп таблицы Д.И. Менделеева изучена эффективность их катионного обмена на сорбенте. Содержание хлоридов, исследованных щелочных, щелочноземельных металлов и аммония составляла 0,15 М. Эффективность процесса оценивалась по разности рН жидкой фазы до и после добавления хлорида исследуемого элемента. На основании полученных результатов получен ряд эффективности $\text{Ba}^{2+} \geq \text{Sr}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Na}^+ \geq \text{NH}_4^+ > \text{Li}^+ > \text{K}^+ \geq \text{Cs}^+ > \text{Rb}^+$. Кроме того, установлено, что эффективность катионного обмена стронция в 7 раз выше эффективности катионного обмена кальция.

Полученные результаты позволят сделать процесс изготовления генераторов рубидия-82 менее трудозатратным и дополнить требования к условиям их транспортировки, хранения и клинического применения.

Продолжается сотрудничество с NAOGEN-PHARMA (France). После заключения Договора о патентной кооперации (международный регистрационный номер PCT/RU2022/000176, дата международной регистрации (подачи) 25.05.2022 г.) и получения marketing authorization на генератор рубидия-82, изготавливаемый по разработанной в ИИИ РАН технологии, в сентябре 2024 г. начато массовое производство генераторов рубидия-82.

Проведены предварительные переговоры с представителями ООО МЕДИКЭР по вопросу организации массового производства генераторов рубидия-82 в Российской

Федерации. Проведено ознакомление с арендованными этой организацией производственными мощностями в г. Снежинск для оценки возможности организации массового производства генераторов рубидия-82.

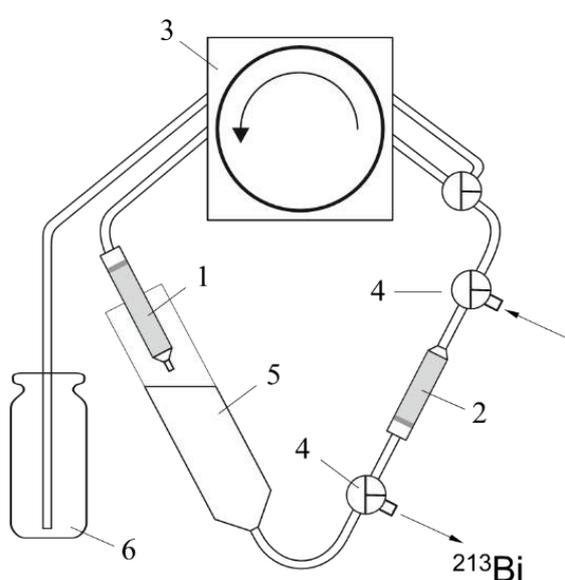
Также с целью организации производства и массового клинического применения в РФ информация по характеристикам генератора рубидия-82 и степени готовности к производству предоставлена в Центр молекулярных исследований (Москва).

Имеющийся научно-технологический задел позволяет при наличии соответствующих производственных мощностей организовать массовое производство генераторов рубидия-82 в Российской Федерации.

2. Разработка циркулирующего $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ генератора для прямого синтеза меченых соединений

В Институте ядерных исследований Российской академии наук (ИЯИ РАН) в рамках работ по производству медицинских альфа-излучателей была разработана методика получения перспективного изотопа ^{225}Ac путем облучения природного тория протонами средней энергии.

Применяемый в ИЯИ РАН линейный ускоритель позволяет за один сеанс облучения получить количество ^{225}Ac , перекрывающее текущие медицинские потребности. Однако, данный метод сопровождается образованием примеси долгоживущего изотопа ^{227}Ac (0,1-0,2% на завершающей стадии облучения). Это обстоятельство требует дополнительных исследований для прямого применения ^{225}Ac с примесью ^{227}Ac . Более предпочтительным вариантом является использование ^{225}Ac в составе генератора $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$, обеспечивающего получение ^{213}Bi с минимальным содержанием как изотопов актиния, так и продуктов распада ^{227}Ac , в первую очередь ^{227}Th и ^{223}Ra . В лаборатории радиоизотопного комплекса ИЯИ РАН были разработаны эффективные генераторные схемы получения ^{213}Bi , одна из которых показана на рисунке 2.1.



1 – колонка с ^{225}Ac ; 2 – колонка накопления ^{213}Bi ; 3 – перистальтический насос;
4 – линия получения элюата ^{213}Bi ; 5 – сосуд для распада ^{221}Fr ; 6 – флакон
Рисунок 2.1 – Схема (а) и прототип (б) циркулирующего генератора получения ^{213}Bi из ^{225}Ac за счет непрерывного отделения и распада ^{221}Fr

Процесс получения изотопа ^{213}Bi осуществлялся в два этапа. На первом этапе в циркуляционном режиме происходило непрерывное выделение ^{221}Fr от ^{225}Ac , адсорбированного на первой колонке, в течение приблизительно 4 часов. В результате

система достигала состояния равновесия, при котором ^{213}Bi пространственно отделялся от материнского ^{225}Ac и концентрировался на второй колонке. В качестве подвижной фазы использовались слабокислые (0,1-0,3 М HNO_3) или нейтральные солевые (0,05-0,15 М NaCl) растворы.

Между колонками располагался промежуточный резервуар с раствором, предназначенный для распада основной части ^{221}Fr . Расчеты и экспериментальные данные демонстрируют, что объём промежуточного раствора в пределах 10-15 мл обеспечивает сбор до 90% ^{213}Bi на второй колонке.

На втором этапе ^{213}Bi извлекался из генератора в малом объеме подходящего элюента. Учитывая, что циркулирующая среда является нейтральной или слабокислой, в которой ^{213}Bi находится в гидролизованной форме, его концентрирование на второй колонке может быть осуществлено с использованием широкого спектра сред.

Особый интерес представляют среды, применяемые в медицинской и фармацевтической практике для разделения и очистки белков и других биологически активных молекул, к числу которых относятся смолы Sephadex - гель трехмерно сшитого декстрана.

В отчете за 2022 год были приведены обнадеживающие результаты экспериментов по прямому синтезу ^{213}Bi -радиоиммуноконъюгата на основе антитела Nimotuzumab непосредственно в циркулирующем $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ генераторе. Во второй колонке, заполненной смолой Sephadex G-25, происходили и синтез, и очистка препарата, что значительно сокращает общее время его получения и, соответственно, потери короткоживущего ^{213}Bi из-за распада. В то же время, для оптимизации параметров генератора и повышения выхода ^{213}Bi -радиоиммуноконъюгата требуется подробное изучение сорбции висмута смолой Sephadex G-25 из нейтральных и слабокислых растворов и последующей десорбции различными лигандами. В 2023 году были проведены сорбционные эксперименты с долгоживущим изотопом висмута ^{207}Bi (31,5 лет).

В отчетном периоде исследовали связывание висмута хелатором ДОТА (2,2',2'',2'''-(1,4,7,10-Тетраазаациклододекан-1,4,7,10-тетраил) тетрауксусная кислота) в среде смолы Sephadex G-25. Этот хелатор считается «золотым» стандартом для комплексообразования большого количества трех- и четырехвалентных металлов и широко используется в составе векторов доставки медицинских радионуклидов. ДОТА-содержащая биомолекула на основе синтетического пептида Substance P (рисунок 2.2) является вектором доставки ^{213}Bi и ^{225}Ac , перспективным для лечения опухолей головного мозга. На модельных растворах изучено влияние смолы Sephadex на мечение ДОТА-Substance P висмутом.

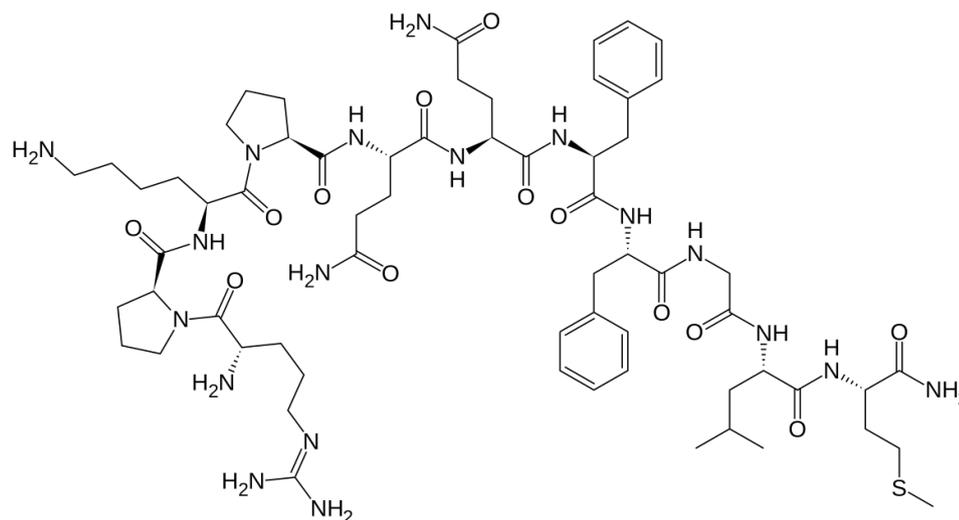


Рисунок 2.2 – Структура пептида Substance P

2.1. Эксперименты по связыванию висмута с ДОТА и ДОТА-Substance P

2.1.1. Статика

Для контроля связывания висмута использовали метод тонкослойной хроматографии (ТСХ). Вначале провели «нулевой» эксперимент для проверки поведения свободного висмута в элюентах при проведении ТСХ.

Использовали следующую методику: к 1,5 мл 0,15М NaCl добавили 30 мкл метки ^{207}Bi в 1М HCl, 30 мкл 1М NaOH, 50 мкл 0,15М ацетатного буфера, отобрали 15 мкл на пластины. ТСХ проводили в элюентах 0,15М NaCl + 0,003М NaOH (1) и 0,05М ЭДТА (этилендиаминтетрауксусная кислота) (2). В качестве подложки использовали импрегнированное SiO_2 стекловолотно производства Agilent. Данный состав элюентов был предложен на основе литературных данных и предварительных экспериментов. После этого провели радиографию (рисунок 2.3, 2.4). Свободный висмут в элюенте 1 остается на старте, в элюенте 2 движется вместе с фронтом растворителя. Для элюента 1 пластины были предварительно вымочены в этом растворе и высушены.

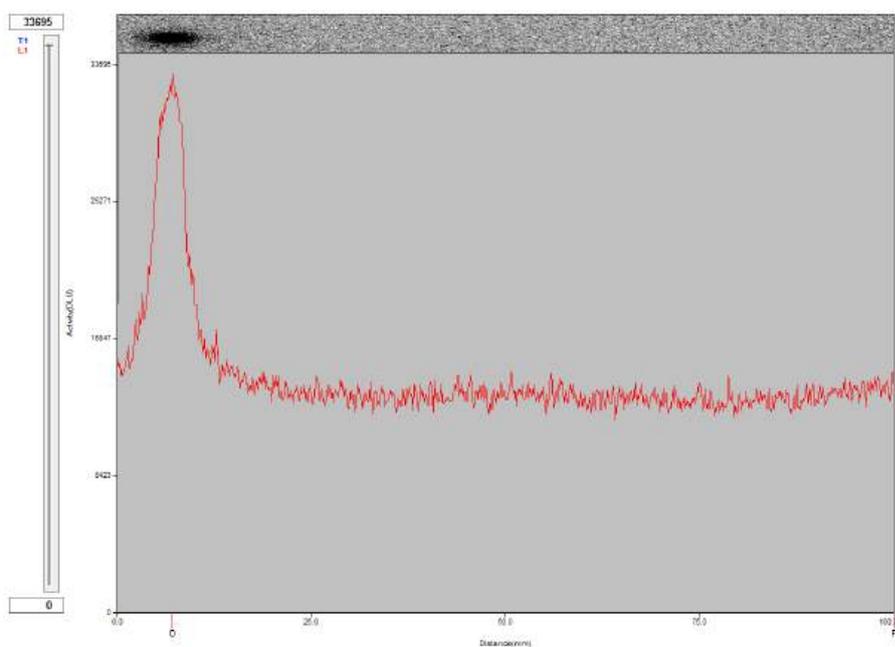


Рисунок 2.3 – Хроматографический профиль системы свободный висмут в элюенте 0,15M NaCl + 0,003M NaOH

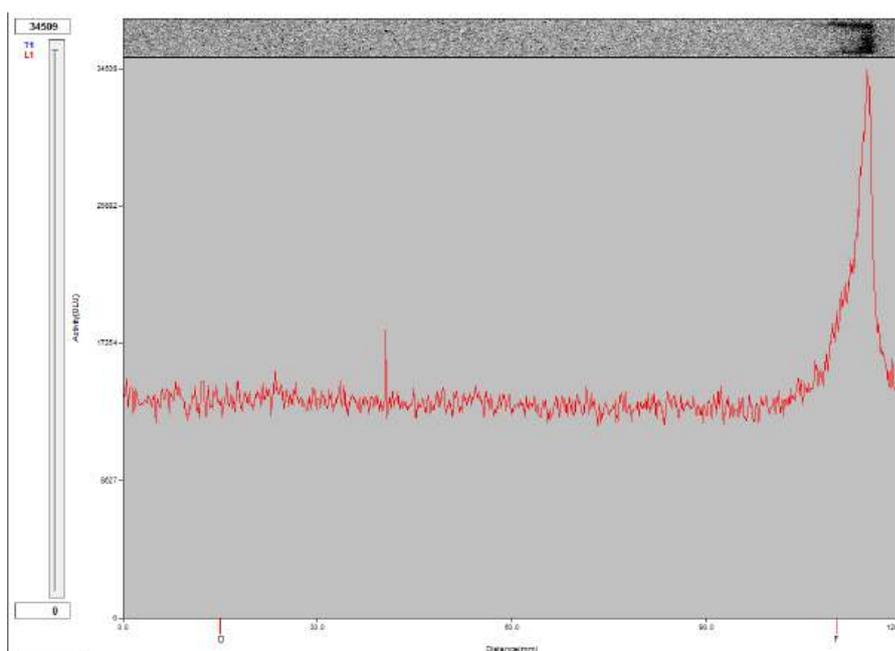


Рисунок 2.4 – Хроматографический профиль системы свободный висмут в элюенте 0,05M ЭДТА

Далее оценили связывание висмута-207 с ДОТА в отсутствие сорбента. Эксперимент проводили в эппендорфе, общий объем раствора составлял 800 мкл. Брали раствор ДОТА с концентрацией 10^{-4} М в 0,15М ацетатном буфере (pH=5,0-5,5), добавляли метку висмута-207 (30 мкл в 1М HCl), 30 мкл 1М NaOH и проводили связывание в термошейкере при $T=95^{\circ}\text{C}$ в течение 10 минут. Аналогичные эксперименты проводили при pH=8,5 (0,1М цитрат натрия и 0,1М TRIZMA буфер). После связывания проводили

радиографию (рисунок 2.5, 2.6). На пластины для ТСХ наносили по 15 мкл раствора, в качестве элюентов использовали растворы 0,15М NaCl + 0,003М NaOH (1) и 0,05М ЭДТА (2). Для элюента 1 пластины были предварительно вымочены в этом растворе.

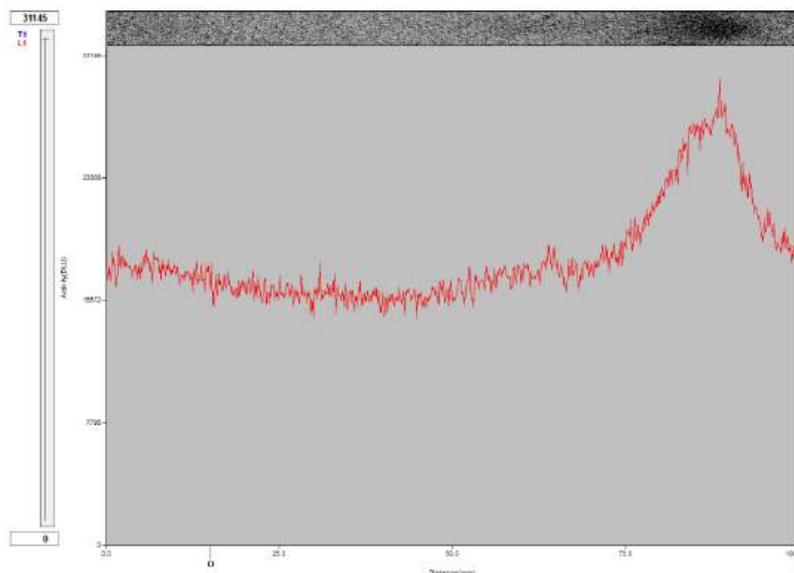


Рисунок 2.5 – Хроматографический профиль комплекса Bi-DOTA, полученного при pH 5,0-5,5, в элюенте 0,15М NaCl + 0,003М NaOH

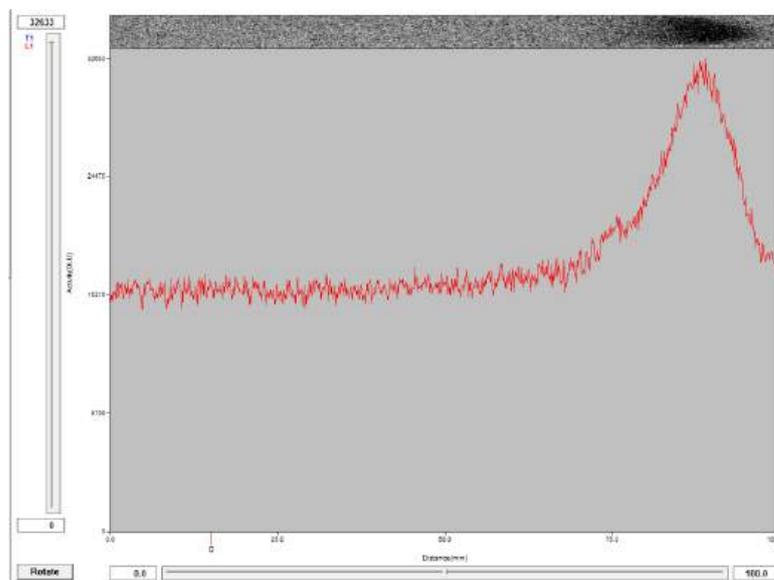


Рисунок 2.6 – Хроматографический профиль комплекса Bi-DOTA, полученного при pH 8,5 в элюенте 0,05М ЭДТА

Связывание висмута количественно в пределах ошибки. R_f одинаковое для всех pH во всех элюентах, комплекс проходит одинаковое расстояние вместе с растворителем.

На следующем этапе изучили связывание висмута-207 с ДОТА в присутствии сефадекса. Эксперименты проводили во флаконах на 5 мл. 50 мг Sephadex G-25 (далее – «сефадекс») помещали во флакон и добавляли 1,5 мл 0,15М NaCl для набухания сефадекса

(2 часа). После набухания добавляли 30 мкл метки висмута в 1М HCl, 30 мкл NaOH, 50 мкл 0,15М ацетатного буфера, 0,15М NaCl до 5 мл и помещали флакон на шейкер на 2 часа. Затем центрифугировали и отбирали 4 мл раствора для измерения степени сорбции висмута. Сорбция составляла 76-80%. Во флакон с сорбентом добавляли 4 мл раствора ДОТА с концентрацией 10^{-4} М в разных буферах и при разных pH: pH=8,5 (0,1М цитрат натрия), pH=8,5 (0,1М TRIZMA буфер), pH=5,0 (0,15М ацетатный буфер). Связывание проводили в термостате при T=95°C и перемешивании в течение 10 минут. После связывания проводили радиографию. На пластины для ТСХ наносили по 15 мкл раствора, в качестве элюентов использовали растворы 0,15М NaCl + 0,003М NaOH (1) и 0,05М ЭДТА (2) (элюент 2 использовали только в эксперименте с 0,15М ацетатным буфером, для данных опытов он избыточен). Для первого элюента предварительно вымачивали пластины.

Связывание висмута в присутствие сефадекса также количественное в пределах ошибки. R_f одинаковое для всех pH. Сорбент не влияет на образование комплекса висмута с ДОТА.

Кинетику связывания висмута-207 с ДОТА исследовали в среде 0,1М цитрата натрия (pH 8,5) и 0,15М ацетатного буфера (pH 5,0-5,5). Использовали 200 мг сорбента. Эксперимент аналогичен предыдущему, но точки для ТСХ отбирали через 30 с, 1 мин, 2 мин, 3 мин, 4 мин, 5 мин, 10 мин протекания реакции. По результатам эксперимента обнаружено, что висмут-207 в растворе полностью связывается с ДОТА уже за 30 секунд, при этом лимитирующей стадией является процесс десорбции. Для температуры 70 °C концентрации хелатора 10^{-3} М определена эффективная константа скорости образования комплекса ^{207}Bi с $\text{H}_4\text{DOTA} - (1,5 \pm 0,1) \cdot 10^{-2} \text{ c}^{-1}$. Влияние значение pH раствора в указанных условиях на скорость образования комплекса не установлена.

Далее провели эксперимент по мечению полученного ранее конъюгата ДОТА-Substance P. Пептид Substance P ранее зарекомендовал себя в качестве эффективного доставщика радионуклидов к различного вида глиомам. Связывание висмута-207 с ДОТА-Substance P проводили в эппендорфах. Брали 600 мкл раствора пептида в 0,1М цитрате, добавляли 30 мкл метки висмута-207 в 1М HCl и 20 мкл 1М NaOH. Концентрация ДОТА-Substance P в растворе составляла 50 мкг/мл. Затем помещали эппендорфы в термошейкер при 95°C на 5 минут. По истечении времени отбирали по 15 мкл на ТСХ (рисунок 2.7) в трех элюентах: 0,15М NaCl + 0,003М NaOH (1), 0,05М цитрат натрия (2), 0,05М EDTA (3). Для элюента 1 предварительно вымачивали пластины.

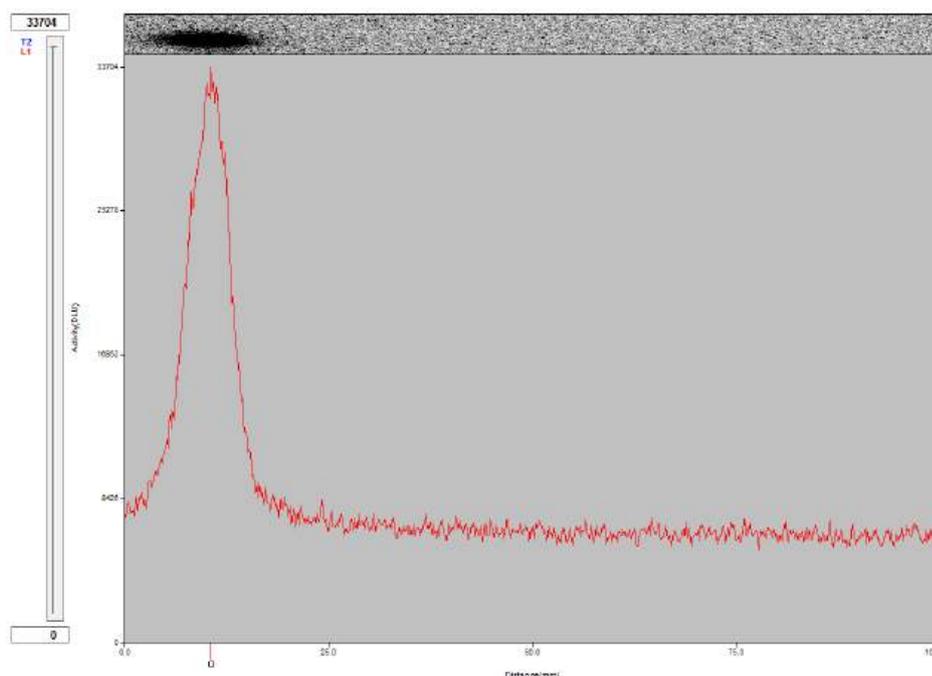


Рисунок 2.7 – Хроматографический профиль системы Bi-DOTA-Substance P в 0,05М ЭДТА

Во всех трех элюентах меченое антитело остается на старте. Для дальнейших экспериментов были выбраны элюенты 1 и 3.

Провели эксперименты по исследованию зависимости мечения висмутом-207 белка Substance P от значения pH в отсутствии сорбента.

Приготовили TRIZMA буфер с концентрацией 0,1 М и $pH_1=10$ и $pH_2=8,5$ и ацетатный буфер с $pH_3=5,5$ и $pH_4=3,5$. Синтез проводили следующим образом: брали 0,6 мл раствора буфера с известным значением pH, добавляли 30 мкл метки висмута в 0,1М HCl, 20 мкл 0,1М NaOH и 200 мкл Substance P с концентрацией 0,14 мкг/мл. Поместили 4 эппендорфа в термошейкер на 10 минут при температуре 90^0 C. Через 10 минут взяли 4 полоски ТСХ, накапали на каждую по 15 мкл раствора из эппедорфов и поставили в раствор 0,05М ЭДТА. Полученные данные показали, что мечение прошло одинаково успешно во всех четырех случаях (рисунок 2.8).

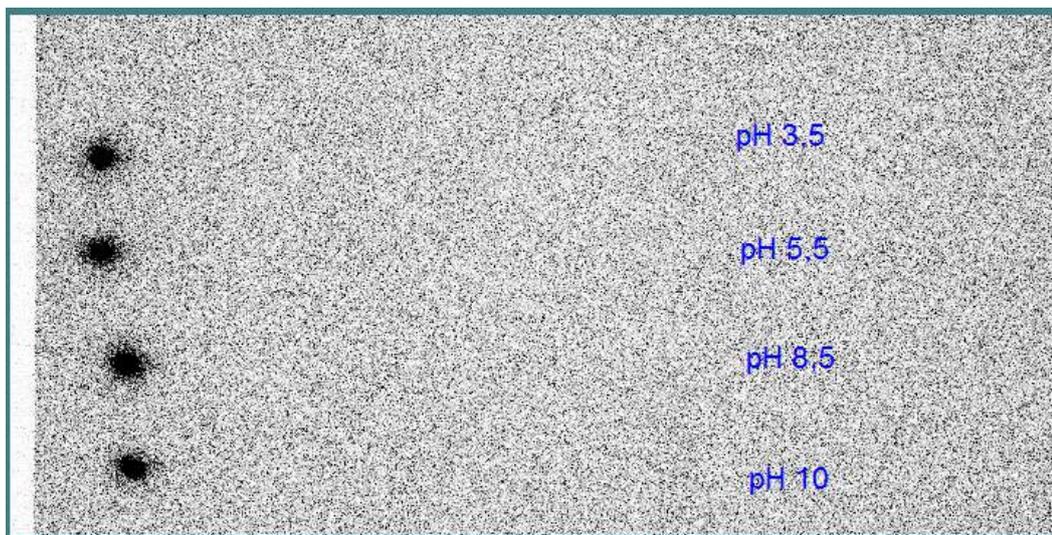


Рисунок 2.8 – Кинетика мечения DOTA-Substance P при разных значениях pH

Из результатов эксперимента видно, что при любом pH за 10 минут происходит полное связывание висмута с пептидом.

В дальнейшем для изучения кинетики мечения были выбраны среды 0,1М цитрата натрия (pH 8,5) и 0,15М ацетатного буфера (pH 5,0-5,5). Эксперимент аналогичен предыдущему, но точки для ТСХ отбирались через 30 с, 1 мин, 2 мин, 3 мин, 4 мин, 5 мин нагревания. Для ТСХ использовали элюент 0,05М ЭДТА, поскольку он позволяет различить меченое антитело и свободный висмут (рисунок 2.9-2.10).

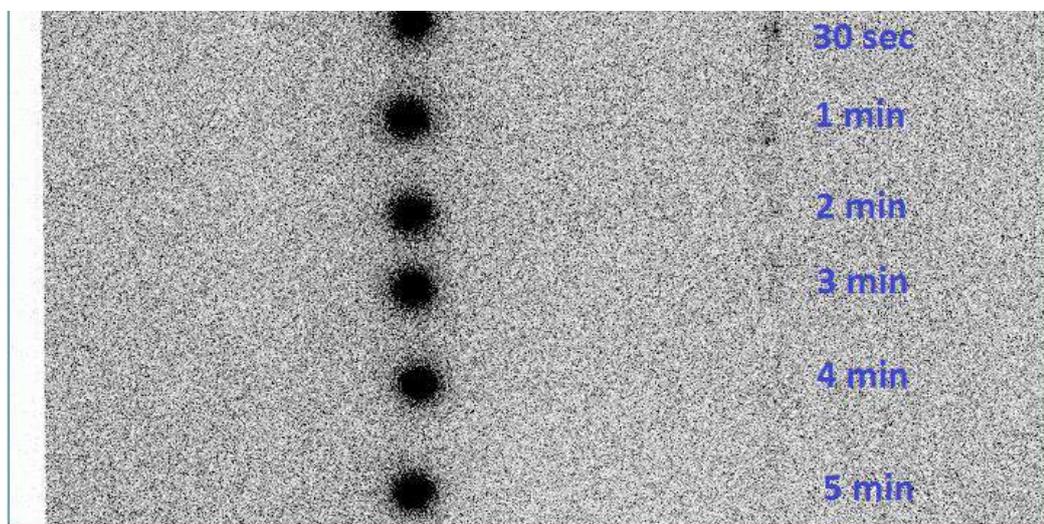


Рисунок 2.9 – Кинетика мечения в 0,1М цитрате натрия

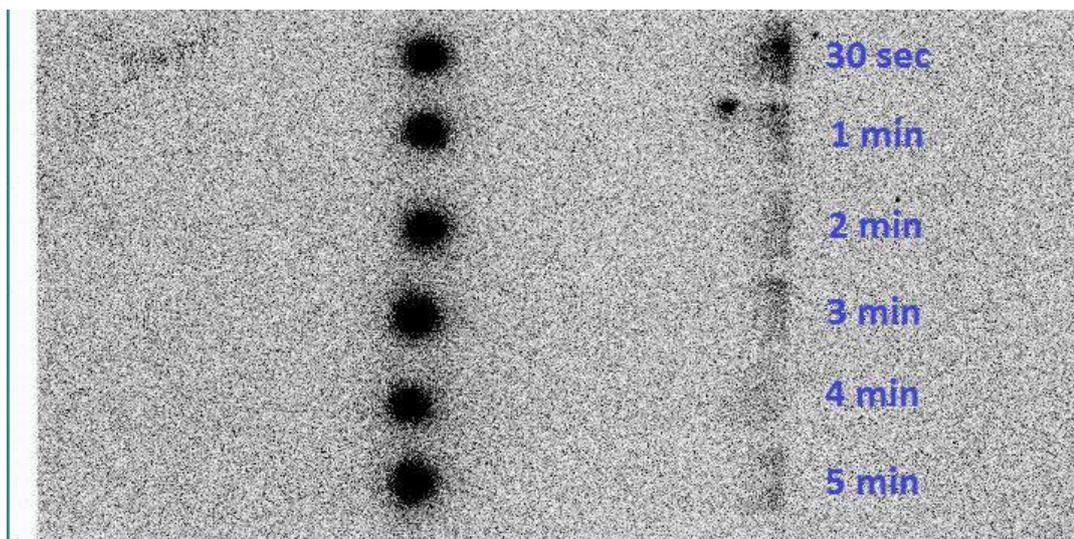


Рисунок 2.10 – Кинетика мечения в 0,15М ацетатном буфере

Видно, что слабощелочная среда (pH 8,5) лучше подходит для проведения висмута, чем слабокислая (pH 5,5).

Исследована кинетика мечения конъюгата ДОТА-Substance P висмутом в 0,15Мацетатном буфере (pH 5,0-5,5) в отсутствии сефадекса (рисунок 2.11) при 95 °С. Концентрация конъюгата составляла 143 мкг/мл. Можно видеть, что за 2 минуты связывается примерно 92% висмута, далее эта доля не изменяется.

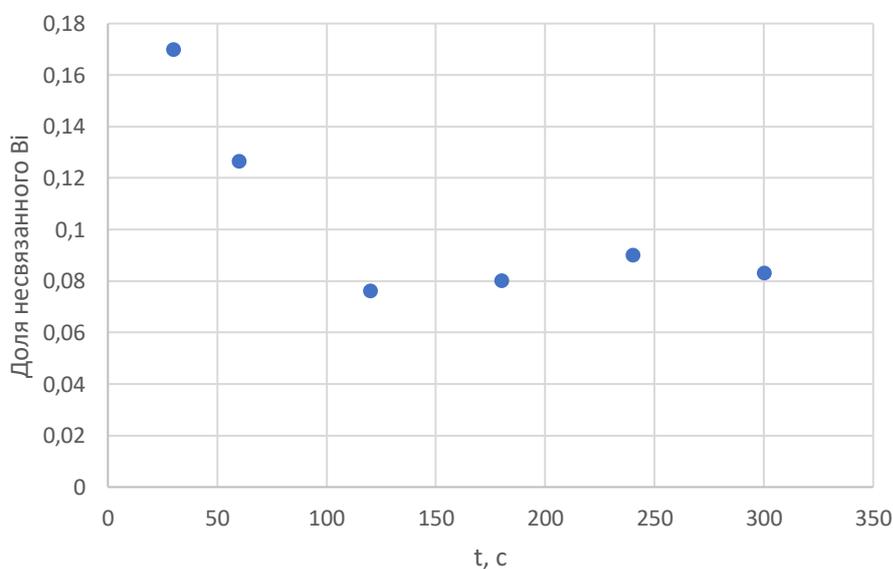


Рисунок 2.11 – Доля несвязанного с ДОТА-Substance P висмута в зависимости от времени проводимого мечения

2.1.2. Динамика

Для проведения экспериментов в динамике использовали хроматографическую колонку, заполненную сефадексом.

Подбор метода определения концентрации пептида DOTA-Substance P. Сначала для определения концентрации DOTA-Substance P пробовали использовать метод Брэдфорда, но он не подошел, предположительно, из-за маленькой молекулярной массы пептида. Было решено проводить измерения на спектрофотометре по линии 233 нм без красителя. Был построен график градуировки относительно 0,15М ацетатного буфера (рисунок 2.12).

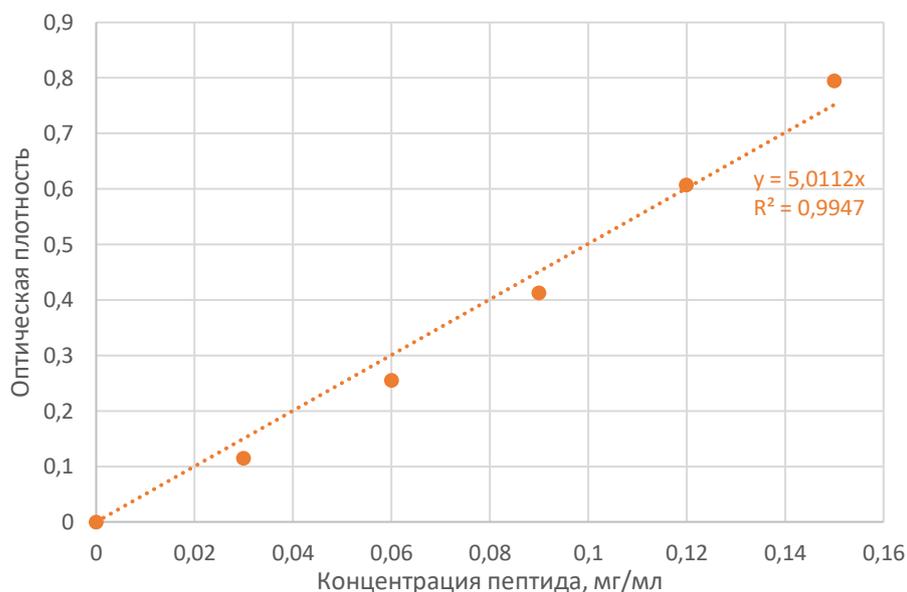


Рисунок 2.12 – Калибровочный график зависимости оптической плотности раствора от концентрации пептида

Изучено вымывание пептида DOTA-Substance P из хроматографической колонки. Данный эксперимент является моделированием десорбции висмута-213 с колонки генератора с одновременным получением радиофармацевтического препарата. На хроматографическую колонку нанесли 1 мл раствора DOTA-Substance P в 0,15М ацетатном буфере с концентрацией 143 мкг/мл. Элюирование проводили 0,15М ацетатным буфером. Концентрацию белка измеряли методом спектрофотометрии по линии 233 нм, после чего были построены кривые элюирования (рисунок 2.13).

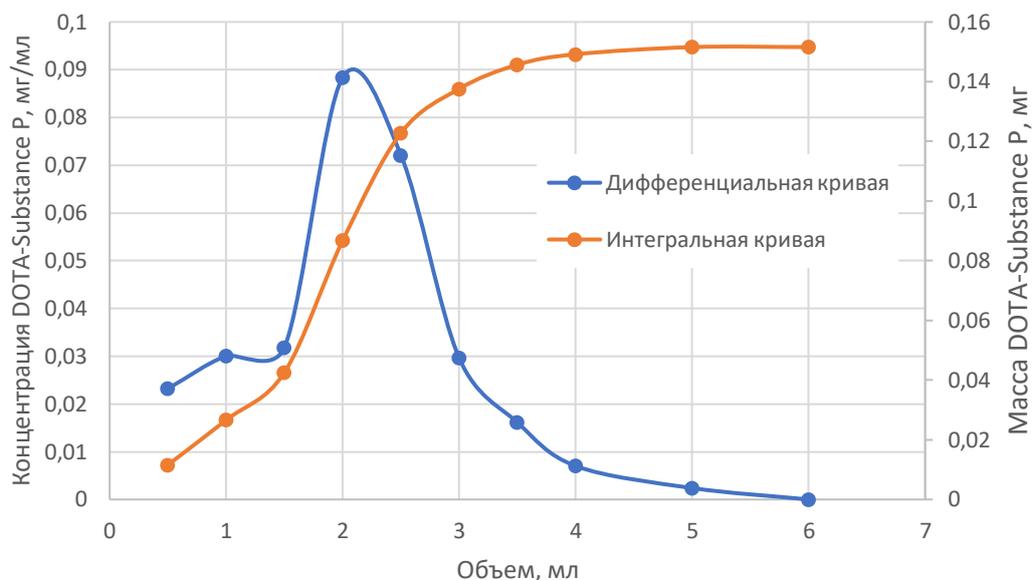


Рисунок 2.13 – Дифференциальная и интегральная кривые элюирования DOTA-Substance P 0,15M ацетатным буфером

По данным рисунка видно, что основная часть пептида элюируется в 1,5-3 мл элюата и при проведении таким образом десорбции висмута готовый радиоконъюгат следует ожидать именно в этой области хроматограммы. Кроме того, интегральная кривая показывает, что суммарная масса белка в элюате (151 ± 9 мг) в рамках погрешности соответствует массе белка, введенной на колонке, что означает, что белок элюируется количественно.

В настоящее время проводятся дальнейшие модельные эксперименты по синтезу радиофармпрепарата непосредственно во второй колонке генератора $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$.

3. Изучение экстракционных и хроматографических методов разделения Ti(IV) и Sc(III) для разработки генераторных схем получения ^{44}Sc

В лаборатории радиоизотопного комплекса ИЯИ РАН совместно с кафедрой Радиохимии Химического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова в рамках договора о научном сотрудничестве проводится работа по исследованию экстракционных и хроматографических методов разделения Ti(IV) и Sc(III).

Целью данной работы является разработка новых генераторных систем $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$. В отличие от применяемых в настоящее время короткоживущих ПЭТ-радионуклидов, период полураспада ^{44}Sc составляет 4,0 ч, что делает его чрезвычайно перспективным для диагностики биологических процессов с длительным метаболизмом. Для реализации поставленной цели на первом этапе работ необходимо провести исследование поведения Ti (IV) и Sc (III) в различных системах жидкость-жидкостной экстракции и экстракционной хроматографии.

В отчётном году были проведены эксперименты по поиску условий разделения Ti(IV) и Sc(III) в азотно- и солянокислых водных растворах методами:

1) Жидкость-жидкостной экстракции, где в качестве органической фазы использовали:

- Ди-(2-Этилгексил) фосфорная кислота (Д2ЭГФК);
- Aliquat 336;
- Трибутилфосфат (ТБФ);
- Три-н-октилфосфиноксид (ТОФО);

2) Экстракционной хроматографии, где в качестве сорбентов использовали:

- TEVA,
- Ln-resin.

3.1. Разделение Ti(IV) и Sc(III) методами жидкость-жидкостной экстракции

3.1.1. Д2ЭГФК

Для определения степени извлечения Ti (IV) и Sc (III) из растворов азотной кислоты экстракцию проводили в пластиковых флаконах на 5 мл с завинчивающейся крышкой при интенсивном перемешивании на шейкере в течение часа. Соотношение водной и органической фазы составило 1:1. Состав органической фазы – 50% ТБФ, 50% толуол (по объёму), органическую фазу предварительно насыщали, взбалтывая с соответствующим раствором водной фазы в течение часа.

Зависимость степени извлечения Ti (IV) и Sc (III) представлена на рисунке 3.1. Как Ti(IV), так и Sc(III) количественно переходят в органическую фазу.

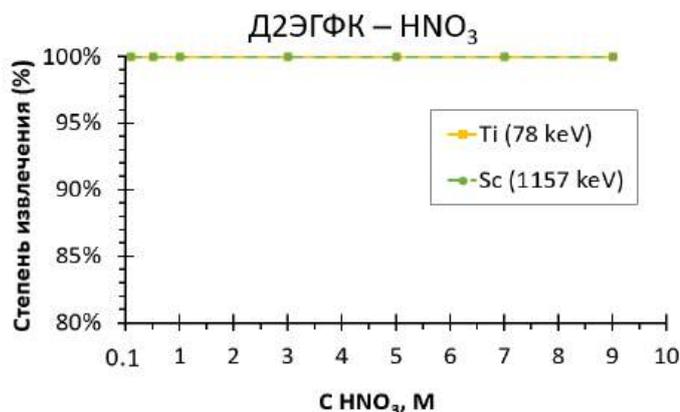


Рисунок 3.1 – Степень извлечения Ti(IV) и Sc(III) в Д2ЭГФК в зависимости от концентрации азотной кислоты

Перемешивание содержимого флаконов при экстракции в вертикальном положении (без интенсивного встряхивания) в течение того же времени (1 час) приводило к уменьшению степени экстракции вплоть до 55% с понижением концентрации кислоты (рисунок 3.2). Кроме того, в данной системе (Д2ЭГФК – HNO₃) наблюдалось сложно воспроизводимое накопление (до 40%) Ti(VI) на границе раздела фаз, которое не зависело ни от интенсивности перемешивания, ни типа и объёма используемой посуды (стеклянные пробирки 10 мл, пластиковые флаконы на 5 мл или 1,5 мл), но имело тенденцию к увеличению с уменьшением концентрации кислоты в водной фазе (рисунок 3.2).

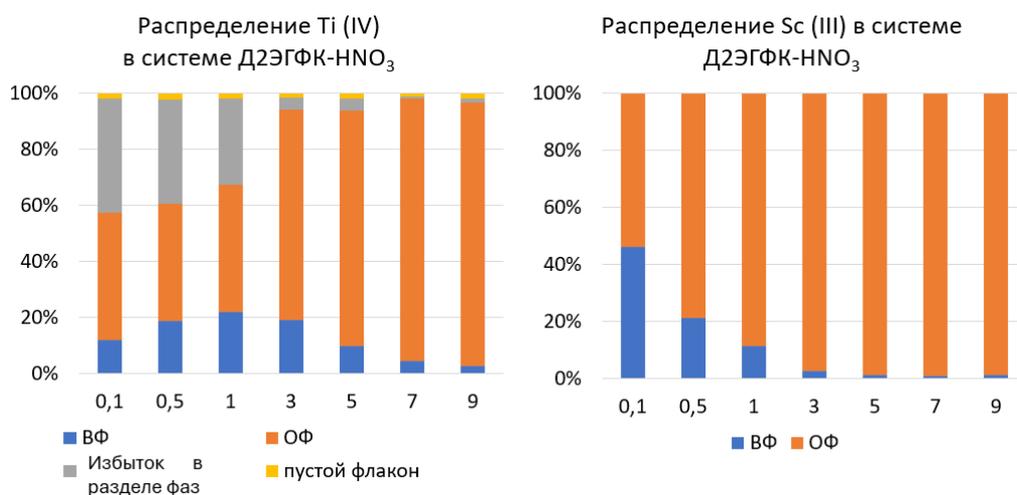


Рисунок 3.2 – Экстракция Ti(IV) и Sc(III) в Д2ЭГФК в зависимости от концентрации азотной кислоты при вертикальном перемешивании флаконов

Для определения степени извлечения Ti(IV) и Sc(III) из растворов соляной кислоты экстракцию проводили аналогично экспериментам с азотной кислотой, интенсивное

перемешивание производили в эппендорфах на 1,5мл на шейкере Vortex. Последующие опыты по жидкость-жидкостной экстракции проводили тех же условиях.

Аналогично результатам с азотной кислотой, для HCl наблюдается количественное извлечение как титана, так и скандия (рисунок 3.3)

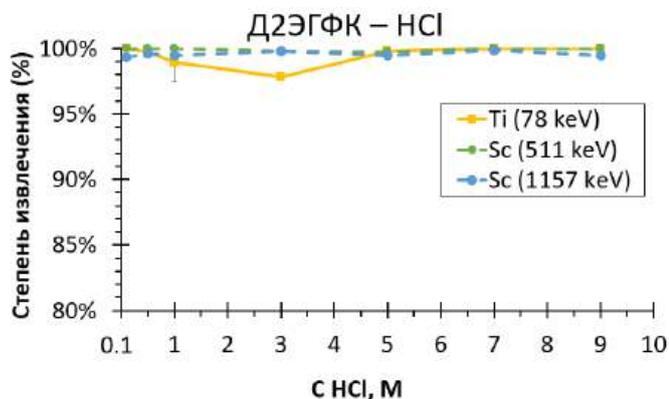


Рисунок 3.3 – Степень извлечения Ti(IV) и Sc(III) в Д2ЭГФК в зависимости от концентрации соляной кислоты

3.1.2. Аликват 336

Эксперимент по экстракции Ti(IV) и Sc(III) аликватом 336 в среде соляной и азотной кислот проводили аналогично опыту Д2ЭГФК – HCl (рисунок 3.4). В данных системах напротив, для Ti(IV) и Sc(III) не наблюдается перехода в органическую фазу за исключением нескольких точек: в разбавленной HNO₃ имеет место слабая экстракция Sc(III); а в концентрированной HCl – Ti(IV).

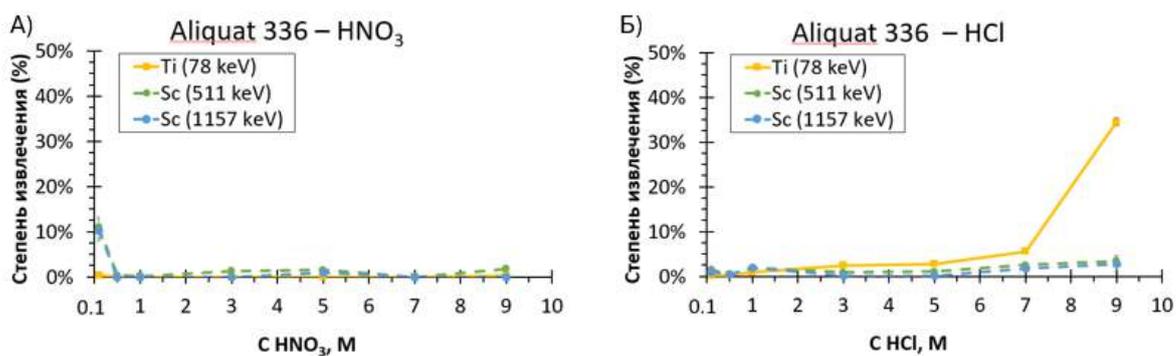


Рисунок 3.4 – Степень извлечения Ti(IV) и Sc(III) в Aliquat 336 в зависимости от концентрации азотной (А) и соляной (Б) кислоты

3.1.3. ТБФ

Результаты экспериментов по экстракции с ТБФ представлены на рисунке 3.5. Степень извлечения как Ti(IV), так и Sc(III) в обеих системах постепенно возрастает с концентрацией кислот, при этом экстракция Ti(IV) начинается из более концентрированных растворов кислот, а степень экстракции Sc(III) выше.

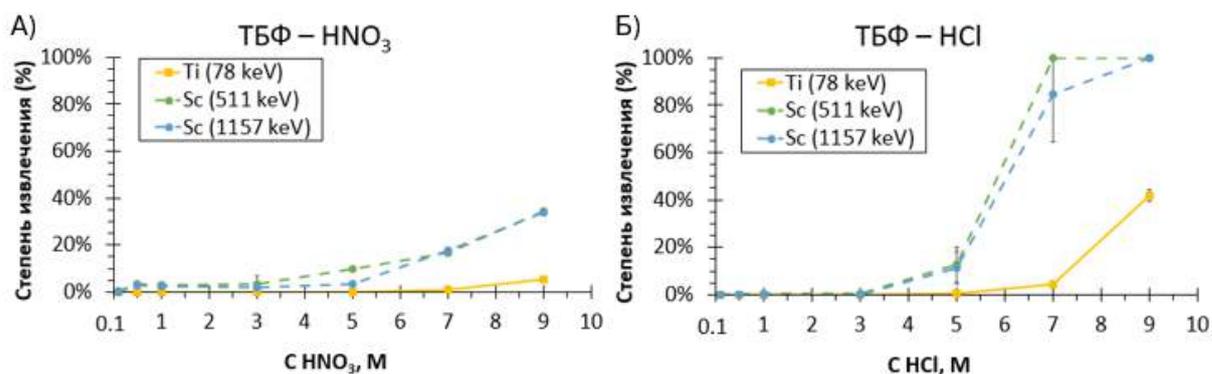


Рисунок 3.5 – Степень извлечения Ti(IV) и Sc(III) в ТБФ в зависимости от концентрации азотной (А) и соляной (Б) кислоты

В благоприятных условиях для разделения Ti(IV) и Sc(III) (7М HCl) был проведен дополнительный эксперимент по установлению зависимости экстракции Sc(III) от концентрации экстрагента. Для данного эксперимента использовали ⁴⁴Sc, полученный с использованием лабораторной генераторной колонки ⁴⁴Ti/⁴⁴Sc, которая была разработана ранее в лаборатории Радиофармацевтической химии Химического факультета МГУ [9]. В данной системе ⁴⁴Sc получают в растворе 0,005М H₂Ox+0,065М HCl. Для перевода ⁴⁴Sc в среду 7М HCl использовали метод, описанный в работе [10] с дополнительной колонкой Dowex 50X8, однако десорбцию ⁴⁴Sc производили 7М HCl вместо буферного раствора NH₄OAc, ⁴⁴Sc практически полностью смывался с дополнительной колонки в 9 мл 7М HCl.

Результаты исследования зависимости экстракции Sc(III) от концентрации экстрагента показаны на рисунке 3.6. Тангенс угла наклона линейного участка зависимости позволяет предположить, что Sc(III) экстрагируется из 7М HCl в основном в виде комплекса Sc[ТБФ]₂.



Рисунок 3.6 – Коэффициенты распределения Sc(III) в ТБФ при экстракции из 7М HCl в зависимости от концентрации ТБФ

3.1.4. ТОФО

Эксперименты по экстракции Ti(IV) и Sc(III) ТОФО проводили аналогично с опытами Д2ЭГФК – HCl, но для приготовления органической фазы использовали 0,1 М раствор ТОФО в толуоле, приготовленный растворением соответствующей навески сухого ТОФО в растворителе. Sc(III) экстрагируется из растворов разбавленной HNO₃, степень экстракции снижается с увеличением концентрации кислоты. Ti(IV) напротив, незначительно экстрагируется в разбавленных растворах азотной кислоты, и начинает частично экстрагироваться в области 7М HNO₃ и выше (рисунок 3.7).

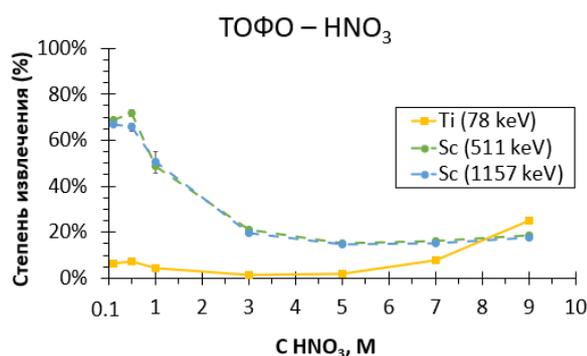


Рисунок 3.7 – Степень извлечения Ti(IV) и Sc(III) в ТОФО в зависимости от концентрации азотной кислоты

Для ⁴⁴Sc был проведен дополнительный эксперимент по экстракции из 0,1 М HNO₃ с варьированием концентрации ТОФО (рисунок 3.8). Для этого эксперимента ⁴⁴Sc получали по тому же пути, что и для аналогичного эксперимента ТБФ – 7 М HCl, однако, ⁴⁴Sc с дополнительной колонки элюировали буферным раствором NH₄OAc 0,25М рН=4, затем полученный скандий упаривали досуха, перепаривали с 0,1 М HNO₃ и растворяли в 9,5 мл 0,1 М HNO₃.



Рисунок 3.8 – Коэффициенты распределения Sc(III) в ТОФО при экстракции из 0,1 М HNO₃ в зависимости от концентрации ТОФО

Результаты исследования зависимости экстракции Sc(III) от концентрации экстрагента представлены на рисунке 3.8, они показывают, что при экстракции из 0,1 М HNO₃ Sc(III) существует в органической фазе в виде комплексов, содержащих 2-3 молекулы ТОФО.

В системе ТОФО – HCl (рисунок 3.9) поведение Ti(IV) и Sc(III) аналогично системе ТБФ – HCl, однако экстракция наблюдается в относительно более низких концентрациях HCl и благоприятные условия для разделения находятся в области 3 М HCl.

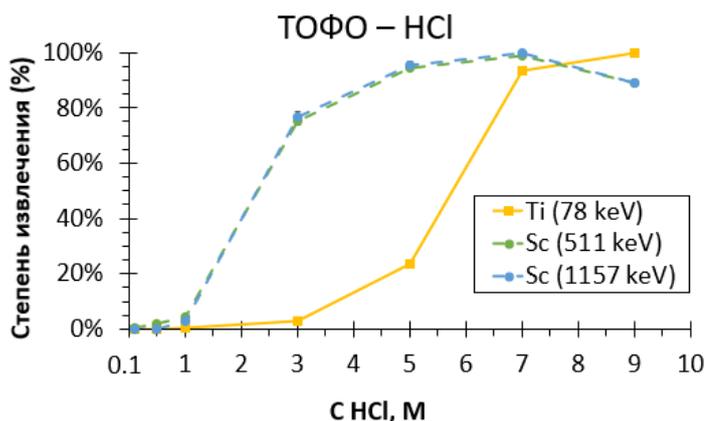


Рисунок 3.9 – Степень извлечения Ti(IV) и Sc(III) ТОФО в зависимости от концентрации соляной кислоты

Для раствора 3 М HCl также была получена зависимость экстракции Sc(III) от концентрации ТОФО (рисунок 3.10). Процедура получения ⁴⁴Sc аналогична эксперименту с ТБФ – 7 М HCl, но смыв ⁴⁴Sc с Dowex 50X8 проводили в 9,5 мл 3 М HCl.

Результаты исследования зависимости экстракции Sc(III) от концентрации экстрагента показаны на рисунке 3.10. Так же, как и в случае экстракции из азотнокислой среды, Sc(III) присутствует в органической фазе в виде комплексов Sc[ТОФО]₂ и Sc[ТОФО]₃.



Рисунок 3.10 – Коэффициенты распределения Sc(III) в ТОФО при экстракции из 3 М HCl в зависимости от концентрации ТОФО

Для дальнейшего изучения экстракции Ti(IV) и Sc(III) в растворах кислот низкой концентрации, а также влияния комплексообразующих реагентов, таких как щавелевая, лимонная и другие кислоты, необходимо перевести ^{44}Ti и ^{44}Sc в соответствующие растворы с низкими концентрациями комплексообразователей. Эту задачу нельзя решить методом упаривания и растворения ввиду склонности Ti(IV) и Sc(III) к гидролизу и образованию коллоидов. Одним из путей решения данной задачи может быть реэкстракция Ti(IV) и Sc(III) из органической фазы в водный раствор, и система с ТОФО может быть использована для этого. Был проведён эксперимент по реэкстракции Ti(IV) и Sc(III) из 0,1 М ТОФО в толуоле, после их экстракции из 7 М HCl. Реэкстракцию проводили различными кислотами с концентрациями 0,01 моль/л и 0,001 моль/л (таблица 1.1). При реэкстракции в водную фазу количественно переходят как Ti(IV), так и Sc(III).

Таблица 3.1 – Степень реэкстракции разбавленными кислотами Ti(IV) и Sc(III) из ТОФО

Кислота	С к-ты, М	Степень реэкстракции (%)			
		Ti (IV)		Sc (III)	
		67 keV	78 keV	511 keV	1157 keV
HAsc	0,01	100%	100%	97%	93%
	0,001	99%	100%	99%	100%
H ₃ Cit	0,01	96%	100%	97%	92%
	0,001	100%	100%	99%	100%
H ₂ Ox	0,01	100%	100%	98%	100%
	0,001	100%	100%	98%	100%
H ₃ PO ₄	0,01	100%	100%	98%	100%
	0,001	100%	100%	100%	97%
HCl	0,01	100%	100%	99%	100%
	0,001	100%	100%	99%	100%

3.2. Разделение Ti(IV) и Sc(III) методами экстракционной хроматографии

Для изучения поведения Ti(IV) и Sc(III) в растворах соляной и щавелевой кислот с экстракционно-хроматографическими смолами проводили эксперименты по определению коэффициентов распределения Ti(IV) и Sc(III). Масса сорбента в каждом эксперименте составила 50 мг, а объём водной фазы – 4 мл. Состав водных фаз был идентичен с экспериментами по жидкость-жидкостной экстракции (растворы HCl или HNO₃ с концентрациями от 0,1 моль/л до 9 моль/л). Флаконы с исследуемыми составами интенсивно перемешивали на шейкере в течение часа. Для разделения смолы и водной фазы, исследуемые образцы пропускали через воронку с фильтром, который задерживал частицы смолы. На гамма-спектрометре измеряли аликвоты только водных фаз.

3.2.1. Сорбент на основе Д2ЭГФК

Коэффициенты распределения (D_w) для Ln Resin (Triskem) представлены на рисунке 3.11.

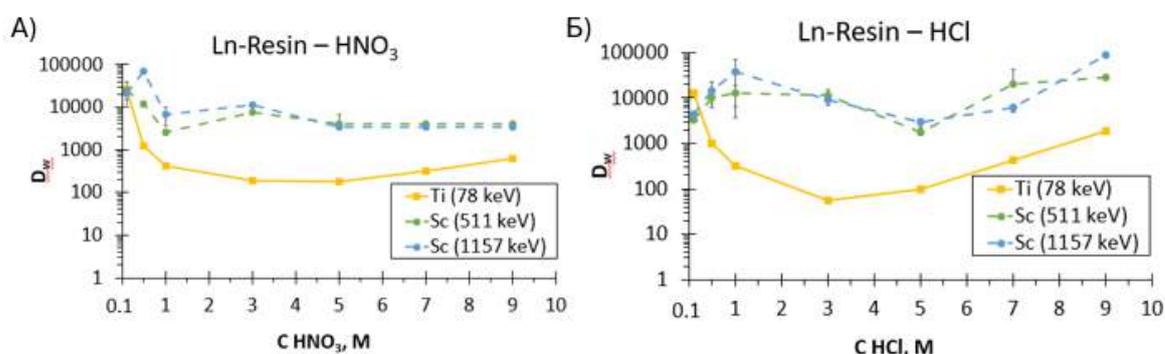


Рисунок 3.11 – Коэффициенты распределения для Ti(IV) и Sc(III) в Ln-resin в зависимости от концентрации азотной (А) и соляной (Б) кислоты

Аналогично системе Д2ЭГФК, как Ti(IV), так и Sc(III), хорошо удерживаются смолой во всей исследуемой области концентраций HCl и HNO₃, однако для Ti(IV) наблюдается снижение коэффициентов распределения в области 3 М кислот.

3.2.2. Сорбент на основе аликвата 336

Коэффициенты распределения Ti(IV) и Sc(III) для TEVA Resin (Triskem) представлены на рисунке 3.12. Аналогично результатам с Aliquat 336, для Sc(III) наблюдается незначительное удержание в разбавленной HNO₃, а для Ti(IV) в 9М HCl.

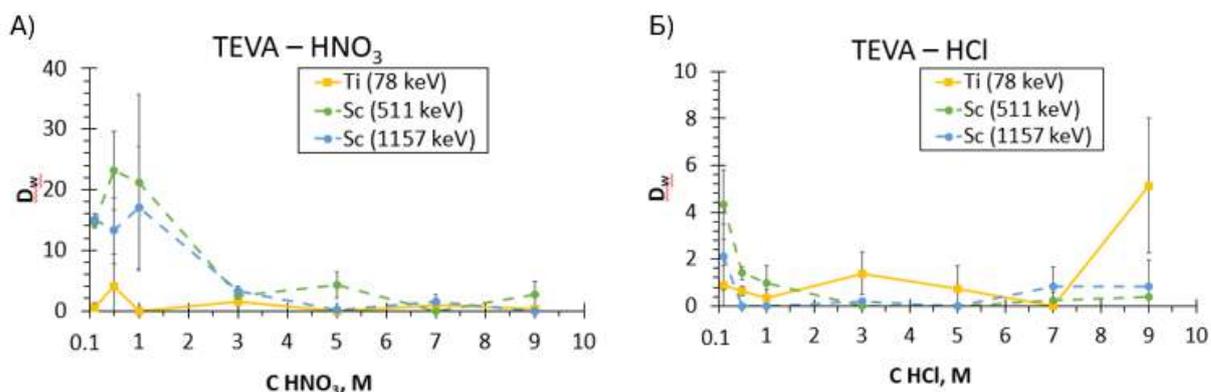


Рисунок 3.12 – Коэффициенты распределения для Ti(IV) и Sc(III) в Teva в зависимости от концентрации азотной (А) и соляной (Б) кислоты

3.2.3. Очистка ⁴⁴Sc от оксалат-анионов

Для экспериментов с ⁴⁴Sc, полученным из разработанной ранее лабораторной генераторной колонки [9], необходимо очистить ⁴⁴Sc от оксалат-анионов. Метод, описанный в работе [10], является время-затратным и приводит к потерям ⁴⁴Sc в следствие распада и растягивания пика скандия при элюировании с колонки очистки. Поэтому

проводится поиск альтернативных путей очистки ^{44}Sc с применением методов экстракционной хроматографии.

На рисунках 3.13 - 3.14 представлены схемы элюирования дополнительных колонок очистки, на которые загружали ^{44}Sc в растворе $0,005\text{M H}_2\text{Ox}+0,065\text{M HCl}$.

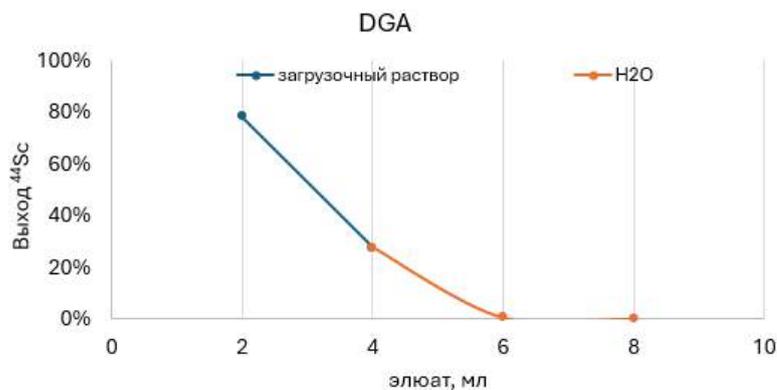


Рисунок 3.13 – Элюирование колонки с сорбентом DGA Resin (Triskem)

Как видно из рисунка 3.13 с колонки с сорбентом DGA Resin ^{44}Sc полностью элюируется в загрузочном растворе и при последующей промывке водой.

В случае сорбента ТК-201, скандий полностью элюируется избытком загрузочного раствора (рисунок 3.14А), или элюируется половина активности при обычной загрузке (рисунок 3.14Б).

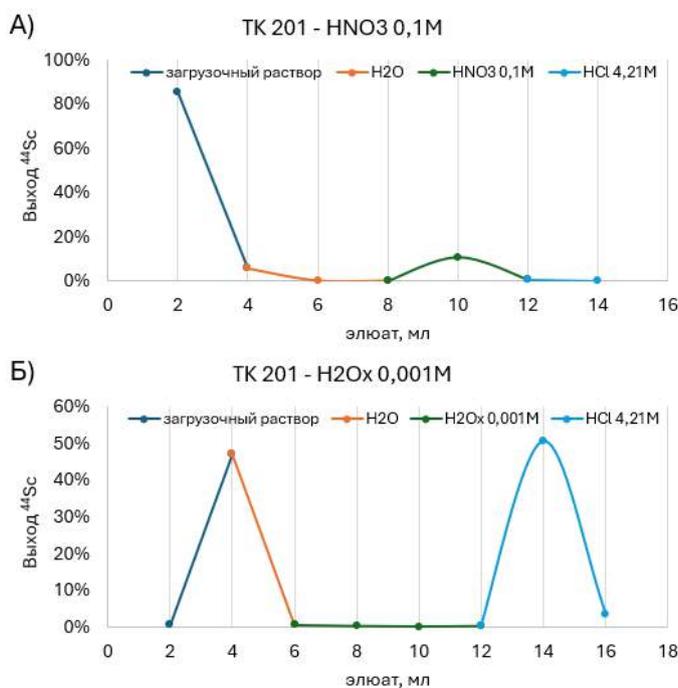


Рисунок 3.14 – Элюирование колонки с ТК-201: А) с избытком загрузочного раствора; Б) без избытка загрузочного раствора

Если перед загрузкой на колонку с ТК-201 раствор ^{44}Sc в $0,005\text{M H}_2\text{Ox}+0,065\text{M HCl}$ довести до $\text{pH}=6$ добавлением концентрированного NH_4OH , то скандий количественно сорбируется на колонке и после промывания водой его можно количественно смыть в 2-3 мл $0,1\text{ M}$ растворов HCl или HNO_3 (рисунок 3.15).

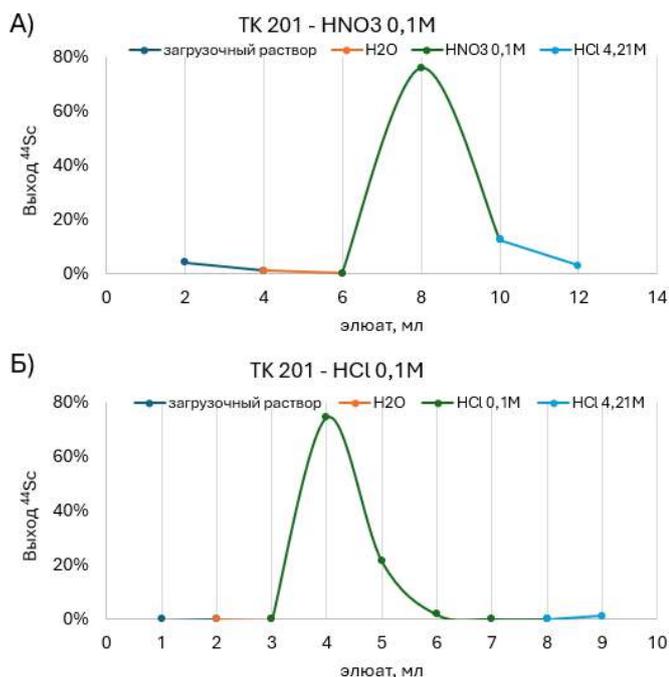


Рисунок 3.15 – Элюирование колонки с ТК-201 при предварительной нейтрализации загрузочного раствора до $\text{pH}=6$: А) HNO_3 $0,1\text{M}$; Б) HCl $0,1\text{M}$

Однако, при использовании ^{44}Sc , прошедшего такую процедуру перевода из щавелевокислого раствора, для мечения H_4DOTA получаются низкие выходы комплекса (рисунок 3.16), что может косвенно свидетельствовать о недостаточной степени очистки.

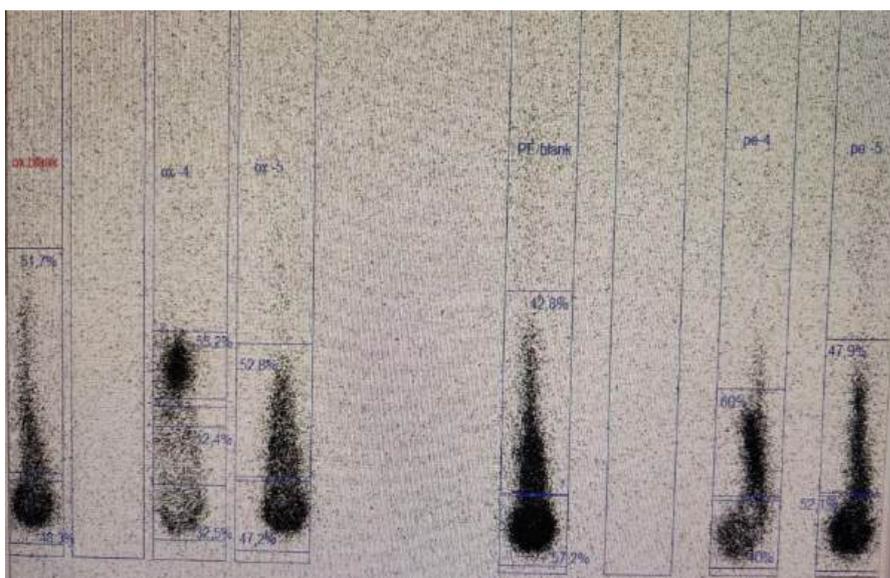


Рисунок 3.16 – Радиография ТСХ пластин (силикагель – $\text{MeOH}/10\%\text{NH}_4\text{OAc}=1/1$). ^{44}Sc во всех образцах остаётся на старте, что соответствует свободному Sc(III)

4. Разработка новой высокопродуктивной ториевой мишени для получения актиния-225 на пучке протонов линейного ускорителя ИЯИ РАН

Мишень для получения актиния-225 описана в публикации [11], в патенте [12], в патентной заявке [13]. Работы проводились совместно с АО НИИ НПО «Луч», ГК Росатом (Подольск).

Актиний-225 и его дочерний продукт распада висмут-213 особенно перспективны для терапии онкологических заболеваний. Путем облучения мишени металлического тория можно получать и другие радионуклиды, в частности, радий-223, протактиний-230 с ураном-230 и др.

Изготовление надежной мишени является центральной проблемой, определяющей производительность процесса наработки, безопасность и надежность осуществления этого процесса. Для достижения высокой производительности нужны достаточно массивные мишени, облучаемые высокоинтенсивными пучками заряженных частиц. При этом мишени подвергаются большим термическим, химическим и радиационным нагрузкам, а разрушение высоко радиоактивной мишени в процессе ее облучения недопустимо.

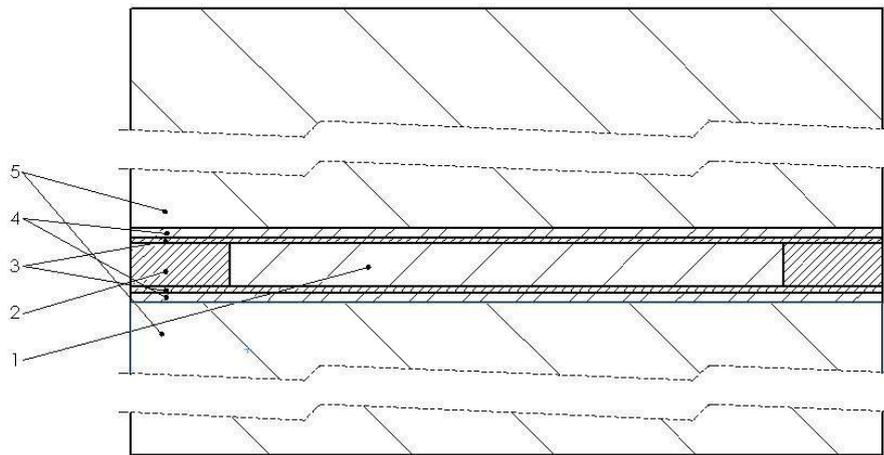
Металлический торий является лучшим мишенным материалом по сравнению с соединениями тория (например, диоксидом тория), так как соединения содержат меньше рабочего материала, из которого образуется целевой радионуклид, и обладают худшей теплопроводностью, чем металлический торий. Во время облучения на ускорителе или в ядерном реакторе мишень обычно охлаждается потоком воды. Металлический торий является химически активным материалом. Материал оболочки должен быть не только устойчив к торию при высокой температуре, которая создается в мишени при высокоинтенсивном облучении, но также не должен реагировать с охлаждающей водой, в которой при облучении образуются активные ионы, радикалы и перекись водорода. Такая активная вода разъедает многие материалы, устойчивые в воде при иных условиях – например, алюминий, молибден, вольфрам и графит. Металлический ниобий является одним из лучших материалов для оболочки, так как температура образования эвтектики с торием высока и составляет около 1435 °С, и ниобий не взаимодействует с активной водой в процессе облучения.

Ранее описывалось изготовление мишени из металлического тория [14], где массивный монолит металлического тория в виде диска толщиной 7 мм приваривают методом диффузионной сварки в вакууме к входным окнам из фольги из горячекатанного молибдена толщиной 100 мкм, а затем покрывают извне электролитически никелем (толщина никеля 60 мкм). Сваренную диффузионной сваркой деталь дополнительно

герметизируют, сваривая ее по контуру мишени с ниобиевыми кольцами толщиной 0,5 мм методом электронно-лучевой сварки. Недостатком такого подхода является то, что, хотя молибден и обладает высокой теплопроводностью, он не является лучшим материалом для изготовления оболочки мишени, так как он трудно подвергается механической обработке, хрупок и взаимодействует с охлаждающей водой при облучении, а покрытие никелем не всегда от этого надежно предохраняет при высокоинтенсивном облучении. Также описаны ториевые мишени в графитовой оболочке, покрытой никелем, мишень в оболочке из нержавеющей стали, а также мишень в ниобиевой оболочке, изготавливаемую с использованием диффузионной сварки, а также электронно-лучевой или лазерной сварки по контуру мишени. Однако способ изготовления последней не конкретизирован, а условия изготовления оказываются критичными для характеристик и качества мишени.

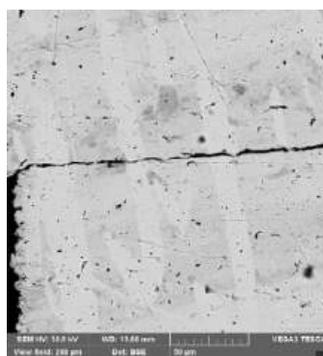
В результате данного исследования был разработан метод изготовления ториевой мишени, которая герметична, обеспечивает теплоотвод и таким образом надежна при облучении на ускорителе заряженных частиц (протонов) с высокой интенсивностью пучка и, в то же время, является достаточно массивной и толстой для обеспечения высокого выхода актиния-225 и других радионуклидов, образующихся в этой мишени.

В данном методе изготовления мишени используется диффузионная сварка металлического тория к плоскости фольги ниобиевой оболочки мишени (входного и выходного окон пучка мишени), что обеспечивает хороший контакт оболочки с металлическим торием в зоне пучка и эффективное охлаждение мишени во время облучения. Диск металлического тория помещают плотно внутрь массивного ниобиевого кольца как указано на рисунке 4.1. Диффузионная сварка ниобиевой фольги к плоскости ториевого диска и ниобиевого кольца проводится в диапазоне температур 1250 до 1430 °С, а наилучшие результаты достигаются в диапазоне от 1350 до 1400 °С (рисунок 4.2). Причем давление на площадь поверхности мишени составляет 30-150 кГ/см², а наилучшие результаты достигаются при давлении от 50 до 100 кГ/см². Время проведения диффузионной сварки при указанной температуре составляет от 20 до 120 мин., а оптимально - 30-60 мин. При более низкой температуре, чем 1250 °С, диффузия недостаточна, чтобы обеспечить прочное соединение тория и ниобия. Наилучшие результаты наблюдаются при температуре выше 1350 °С, а при 1435 °С и выше может происходить эвтектическая реакция между ниобием и торием с образованием жидкой фазы, как следует из диаграммы состояния системы Th-Nb [15], что может привести к разрушению оболочки. А ввиду флуктуаций и неравномерностей распределения температуры, лучше всего поддерживать ее несколько ниже 1400 °С.

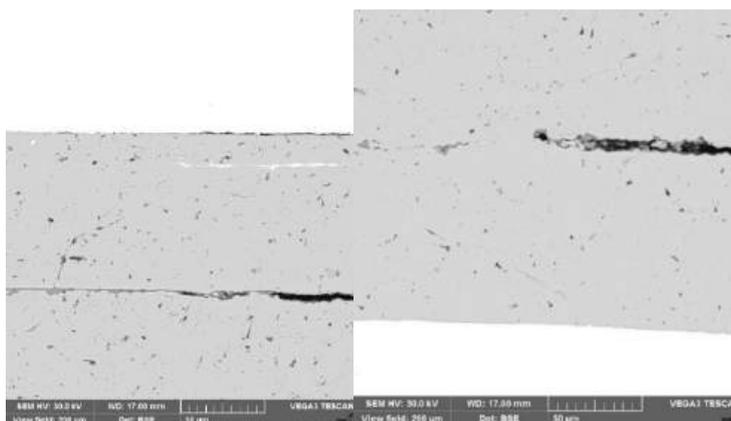


1 – Монолитный диск металлического тория, 2 – кольцеобразный ниобиевый корпус оболочки мишени, 3 – ниобиевая фольга, привариваемая к ториевому диску и к ниобиевому кольцу, 4 – проставка из вольфрама или оксида алюминия, 5 – пуансоны из металлического молибдена

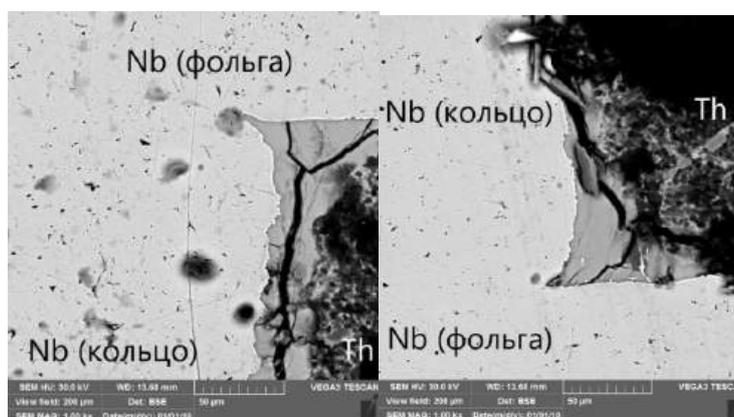
Рисунок 4.1 – Схема проведения диффузионной сварки



(a)



(б)



(в)

Рисунок 4.2 – Результаты металлографического исследования (с помощью электронного микроскопов) диффузионной сварки, проведенной при разных температуре в камере сварки (см. Пример 1): (а) – 1200 °С, (б) – 1250 °С, (в) – 1350 °С

Эксперимент с использованием металлографического анализа шлифов (рисунок 4.3) с помощью оптического и электронного микроскопов показал, что при указанных температурах полное соединение происходит при давлении 30-150 кГ/см², а при более высоком давлении при данной температуре проявляются симптомы расплющивания детали. Наиболее надежные и воспроизводимые результаты наблюдаются при давлении от 50 до 100 кГ/см².

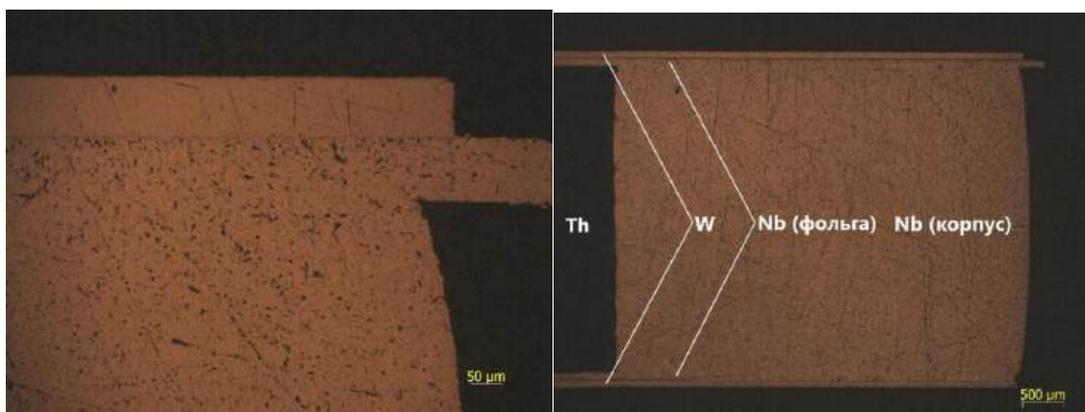


Рисунок 4.3 – Результаты металлографического исследования шлифа с помощью оптического микроскопа при предельном давлении 150 кГ/см²

Эксперимент также показал, что при времени менее 20 мин в данной детали не образуется достаточно прочного соединения, а экспозиция 30-60 мин. достаточна для соединения в оптимальном диапазоне температур при оптимальном давлении, а при экспозиции более 120 мин. практически никаких новых изменений не происходит.

Торий при данных температурах имеет больший коэффициент температурного линейного расширения, чем ниобий (при 1400 °С – примерно $14 \cdot 10^{-6}$ град⁻¹ и $10 \cdot 10^{-6}$ град⁻¹ соответственно). После проведения первых экспериментов по диффузионной сварке мишени в некоторых случаях на фольге образуется дефект – вспухлость, а при проведении металлографического анализа иногда обнаруживаются различные дефекты. Это свидетельствовало о том, что при плотной упаковке мишенного материала в капсулу и при большем коэффициенте температурного расширения тория происходит «распухание» мишени в процессе нагрева. Поэтому в дальнейшем вытачивали V-образную канавку изнутри массивного ниобиевого кольца тела мишени. V-образную канавку удобно делать с технологической точки зрения, но другая форма канавки также возможна. Расчетная разница в объемном расширении тория и ниобия при нагревании до рабочих температур составляет около 2% от объема тория, но с учетом с одной стороны – неравномерности расширения, а с другой – упругости материалов, изготавливали канавку до 6 % от объема тория в мишени, но не менее 1%. В результате, вспухлость и дефекты в этом случае не наблюдались.

Готовые мишени металлического тория в ниобиевой оболочке показаны на рисунке 4.4.

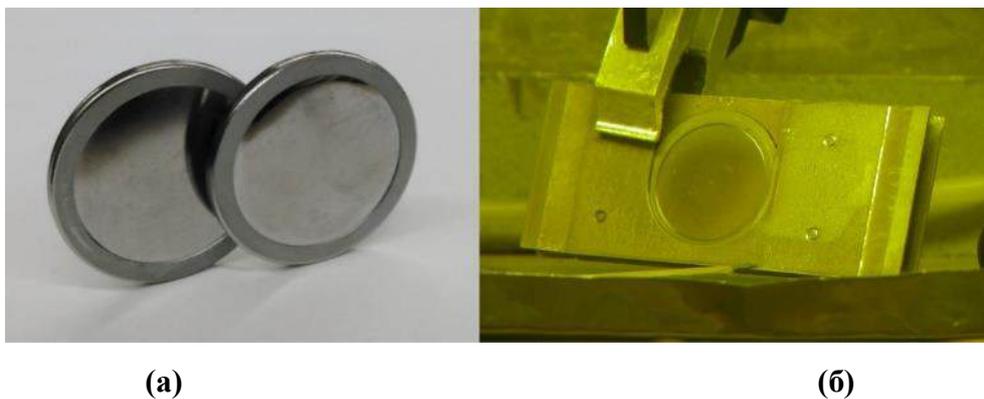


Рисунок 4.4 – Готовые мишени металлического тория в ниобиевой оболочке: (а) – мишени до облучения, (б) – мишень в алюминиевом держателе после облучения на пучке протонов ускорителя

Как было установлено ранее, оптимальная толщина ниобиевой фольги – входного и выходного «окон» пучка протонов мишени составляет обычно от 70 до 150 мкм. При меньшей толщине в реально имеющихся фольгах после облучения интенсивным пучком протонов могут появляться дефекты, нарушающие герметичность мишени. Слишком толстые фольги уменьшают теплопередачу и приводят к потере энергии протонов, что снижает выход получаемых радионуклидов. Однако эксперимент показал, что после проведения диффузионной сварки на ниобиевых окнах-фольгах снаружи мишени появляются волны высотой до 50 мкм. По-видимому, это происходит потому, что во время диффузионной сварки при высокой температуре и под прессом высокого давления кольцо фиксировано, а фольга ниобия вместе с торием расширяется больше, и после охлаждения образуются волны. Поэтому мы использовали ниобиевые фольги с исходной толщиной 200 мкм и выше, а после проведения диффузионной сварки сошлифовывали снаружи плоскости мишени не менее 70 мкм, чтобы удалить образовавшиеся волны и достигнуть заданной толщины окна. Кроме того, шлифование позволяет удалить следы прокладки, которая использовалась при диффузионной сварке (обычно вольфрам или оксид алюминия). Во время облучения мишени температуры гораздо ниже, чем при изготовлении мишени, и волны на поверхности оболочки мишени не образуются.

Чтобы уменьшить вероятность проникновения тория через дефекты в фольге и попадания радионуклидов в охлаждающую воду, используют дополнительное покрытие оболочки мишени извне другим материалом. Было использовано никелевое покрытие, нанесенное путем диффузионной сварки или электрохимически или путем разложения карбонила никеля ($\text{Ni}(\text{CO})_4$) в динамическом вакууме при температуре не менее 400 °С. Никель здесь не контактирует с торием, с которым он может взаимодействовать, но также как и ниобий, никель не взаимодействует с активной водой при облучении. Также могут использоваться благородные и некоторые другие металлы, не взаимодействующие с

химически активной охлаждающей водой, а также с ниобием – при температурах, достигаемых на оболочке мишени при ее облучении заряженными частицами.

Важно отметить, что диффузионная сварка тория к ниобию в принципе может осложнить дальнейшее вскрытие мишени и ее химическую переработку после облучения для извлечения актиния-225 и других радионуклидов. Однако, эта проблема успешно решается путем селективного растворения ниобия и тория [12], а также других металлов (если используется дополнительное металлическое покрытие).

5. Получение натрия-22 для изготовления источников радиоактивного излучения

Натрий-22 (^{22}Na) является одним из важнейших радионуклидов для науки, промышленности и медицины. Он является нейтронодефицитным изотопом, поэтому его невозможно нарабатывать в заметных количествах на ядерных реакторах.

Этот радионуклид имеет достаточно большой период полураспада (2,6 года), испускает позитроны и гамма-кванты высокой энергии 1274,5 кэВ, он также характеризуется высоким значением минимально значимой активности (МЗА). Это делает его удобным в использовании в различных фундаментальных исследованиях, при калибровке ПЭТ и гамма-детекторов, а также для дистанционного определения толщин, неравномерностей, дефектов в самых различных изделиях на промышленных предприятиях. В настоящее время линейный ускоритель протонов ИЯИ РАН со Стендом облучения изотопных мишеней [16] является единственной установкой в России, где может осуществляться наработка натрия-22.

ИЯИ РАН заключил новый Договор № 3024-4 от 10 апреля 2024 с Акционерным обществом «РИТВЕРЦ», включающий совместное проведение работ и поставку натрия-22 в алюминиевой мишени, облученной на линейном ускорителе ИЯИ РАН. Все условия договора были выполнены.

Для дальнейшей наработки натрия-22, востребованного российской наукой и промышленностью, необходимо наработка натрия-22 на ускорителе ИЯИ РАН с более высокой производительностью.

В данной работе была разработана новая мишень из металлического алюминия (дюраль) для облучения в дальнейшем на Стенде облучения изотопных мишеней. Стенд был в 2024 году модернизирован.

Натрий-22 может образовываться во многих ядерных реакциях протонов с алюминием: $^{27}\text{Al}(\text{p}, 2\text{p}4\text{n})^{22}\text{Mg} \rightarrow ^{22}\text{Na}$, $^{27}\text{Al}(\text{p}, \alpha 2\text{n})^{22}\text{Mg} \rightarrow ^{22}\text{Na}$, и $^{27}\text{Al}(\text{p}, 3\text{p}3\text{n})^{22}\text{Na}$, $^{27}\text{Al}(\text{p}, \alpha\text{pn})^{22}\text{Na}$ и др. Кумулятивные сечения были ранее измерены разными авторами (рисунок 5.1).

6. Дозиметрия высокоинтенсивного протонного излучения

6.1. Юстировка системы пассивного формирования

Для достижения равномерного облучения протяжённых биологических объектов протонным пучком с рекордной средней мощностью дозы используется модуляция спектра энергии протонов и формирование терапевтического пучка с использованием стандартной системы двойного пассивного рассеяния, состоящей из первичного и вторичного рассеивателей, а также модулятора энергии типа гребенчатого фильтра (рисунок 6.1).

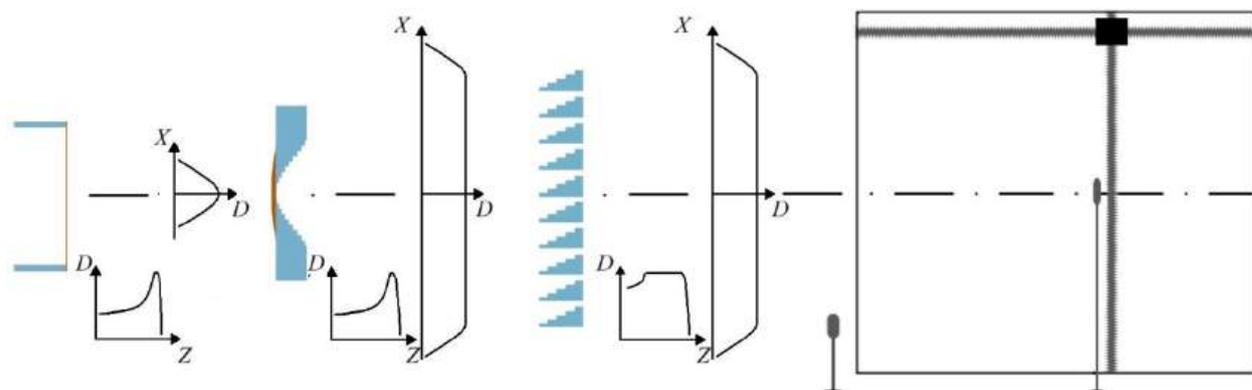


Рисунок 6.1 – Схема системы двойного рассеяния КПТ ИЯИ РАН

Ввиду куполообразной формы вторичного фигурного рассеивателя, протоны, попадающие в центр рассеивателя, теряют больше энергии, чем протоны, которые проходят через узкие участки рассеивателя на его периферии. Позиционирование вторичного рассеивателя требуется выполнить строго по центру пучка. С помощью автоматизированного механизма этот рассеиватель дистанционно перемещается в область пучка в поперечной плоскости. Корректность положения фигурного рассеивателя определяется по поперечным дозовым распределениям, которые измеряются в конвенциональном режиме облучения ионизационной камерой в водном фантоме вблизи его входной стенки.

Черенковский монитор, описанный в главе 6.3 данного отчёта, в ходе юстировки системы формирования и дозиметрии требовалось также установить по центру пучка. Для этого на нашем ускорителе впервые были использована система протонной радиографии. Черенковский монитор располагался между пучком протонов и цифровой рентгеновской кассетой CRMD 4.0 (Agfa, Бельгия). Полученное цифровое изображение представлено на рисунке 6.1.2.



Рисунок 6.2 – Проекция Черенковского монитора, полученного средствами протонной радиографии

Ожидается, что таким же способом можно получить радиографическое изображение фигурного рассеивателя с контурами пучка, что может существенно упростить процедуру его юстировки.

Перед облучением в пике Брэгга любых протяженных биологических мишеней (планшетов, чашек Петри, пипеток с клетками или оплодотворенных перепелиных яиц) проводилось модулирование энергии пучка для оптимального совмещения МПБ с мишенью. Модулятор энергии типа гребенчатый фильтр представляет собой конструкцию с повторяющимися секциями (гребёнками), каждая из которой имеет форму пирамиды, разрезанной пополам вдоль ее высоты, со ступенями различной ширины и толщины. Эти секции (гребёнки) отделяются друг от друга так называемой пустой ступенью, которая отвечает за вклад невзаимодействующих с фильтром протонов. Угол поворота гребенчатого фильтра по отношению к направлению пучка протонов в горизонтальной плоскости является важным параметром установки и задаётся дистанционно автоматизированным механизмом поворота. Как показали наши исследования, угол поворота гребенчатого фильтра сильно влияет на форму МПБ (рисунок 6.1.3).

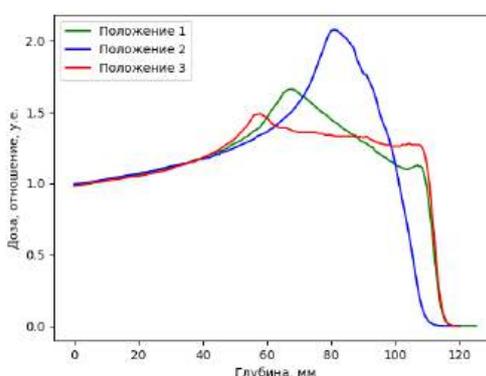


Рисунок 6.3 – Глубинные дозные распределения для различных углов поворота гребенчатого фильтра

Для упрощения и ускорения процедуры поиска оптимального значения угла поворота гребенчатого фильтра в горизонтальной плоскости была использована методика

с одновременным измерением дозы в двух точках модифицированной кривой Брэгга (рисунок 6.1.4). Измерения дозы ионизационными камерами проводились одновременно в двух точках, расположенных, в частном случае энергии протонов в 160 МэВ, в воде фантома на глубинах в 65 и 105 мм, соответствующих крайним точкам плато у МПБ. Целью измерений было найти наиболее близкое значение доз в двух реперных точках, варьируя поворот гребенчатого фильтра автоматизированным механизмом поворота.



Рисунок 6.4 – Схематическое изображение предложенной методики калибровки гребенчатого фильтра по двум ионизационным камерам

Данная методика позволяет существенно ускорить процедуру поиска оптимального положения гребенчатого фильтра, поскольку не требует снятия глубинного дозного распределения. Как видно из рисунка 6.1.3 оптимальное положение гребенчатого фильтра достигается при отношении доз 1,09, что свидетельствует о неоднородности дозы в области плато МБП в районе 9%. В ходе эксперимента новая методика позволила найти оптимальное положение после выполнения всего 7 измерений (таблица 6.1), что существенно меньше количества измерений, требуемых для снятия одного глубинного дозного распределения с шагом 1 мм.

Таблица 6.1 – Значения отношения доз в двух реперных точках МПБ в зависимости от угла поворота гребенчатого фильтра

Угол поворота, усл. ед.	16	14	12	11	10	9	8
$\frac{D_1}{D_2}$	1,18	1,17	1,14	1,14	1,11	1,09	1,10

6.2. Дозиметрия в водном фантоме

В ходе работы был проведен анализ согласованности и корректности расчетов и измерений дозовых распределений вблизи пика Брэгга, где характерен быстрый рост ЛПЭ. Для этого мы использовали расчеты методом Монте-Карло (программный пакет TOPAS

МС [17]) и экспериментальные данные, полученные на ускорителе протонов с использованием радиоохромных пленок и ионизационных камер.

Работа проводилась в широком диапазоне мощностей доз: конвенциональный режим облучения с током $I = 18$ мкА использовался с целью получения достоверных глубинных распределений с применением ионизационной камеры. Такой ток пучка был выбран в силу того, что при высоких мощностях доз нарушается линейность отклика ионизационных камер [18]. В данном режиме облучения на основе измерений ионизационной камерой утонялась достоверность математической модели, а также сравнивались глубинные дозные распределения в воде, полученные по измерениям ионизационной камеры и радиоохромных плёнок (рисунок 6.5).

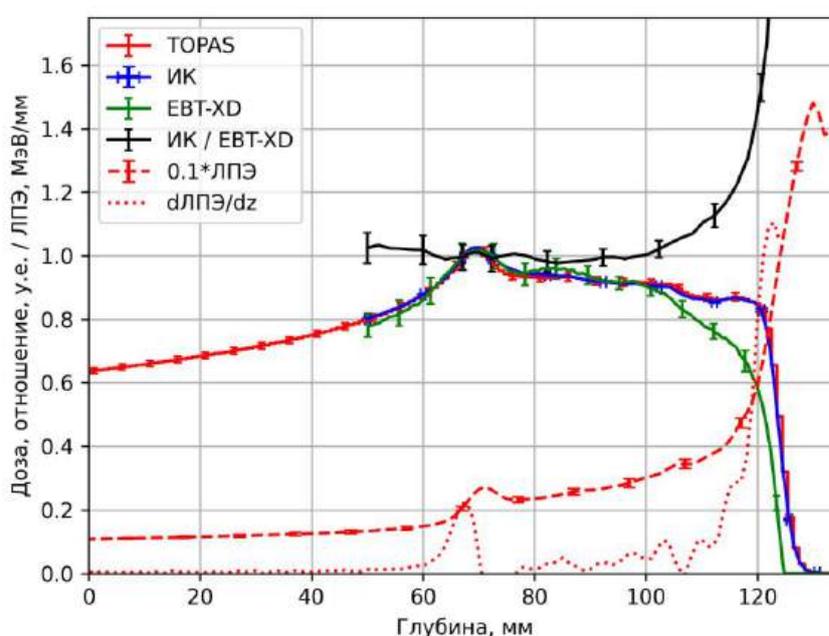


Рисунок 6.5 – Глубинные распределения характеристик пучка протонов для модифицированного пика Брэгга в конвенциональном режиме облучения. TOPAS – расчётная кривая, ИК – ионизационная камера, ЕВТ-ХД – радиоохромная плёнка, ИК/ЕВТ-ХД – отношение данных ионизационной камеры и плёнки, ЛПЭ – линейная передача энергии, $dЛПЭ/dz$ - производная линейной передачи энергии

Глубинное распределение дозы, рассчитанное в пакете TOPAS МС (красная кривая), достаточно хорошо согласуется с измеренным ионизационной камерой (ИК, синяя кривая): коэффициент детерминации $R^2 = 0,996$ и данные кривые почти совпадают после сглаживания рассчитанной кривой. Отметим, что теоретическая и экспериментальная кривые почти совпали, когда единственный свободный параметр расчета (σ_E) принял нулевое значение. В то же время распределение, полученное с применением пленок (зеленая кривая, ЕВТ-ХД), существенно недооценивает дозу в области максимальных ее значений, где этот недоучет доходит почти до 40%. Это иллюстрирует отношение значений

доз, полученных с ионизационными камерами и пленками (черная кривая, ИК/ЕВТ-ХД). Еще одним выводом из 6.5 является то, что указанное экспериментальное отношение значений доз (ИК/ЕВТ-ХД) и градиент ЛПЭ ($d\text{ЛПЭ}/dz$) имеют схожее поведение и даже совпадающие по положению перегибы соответствующих кривых (черная и пунктирная красная кривые).

В высокоинтенсивном SPLASH режиме данные плёночных детекторов сравнивались с результатами моделирования в программном пакете TOPAS MC (рисунок 6.6).

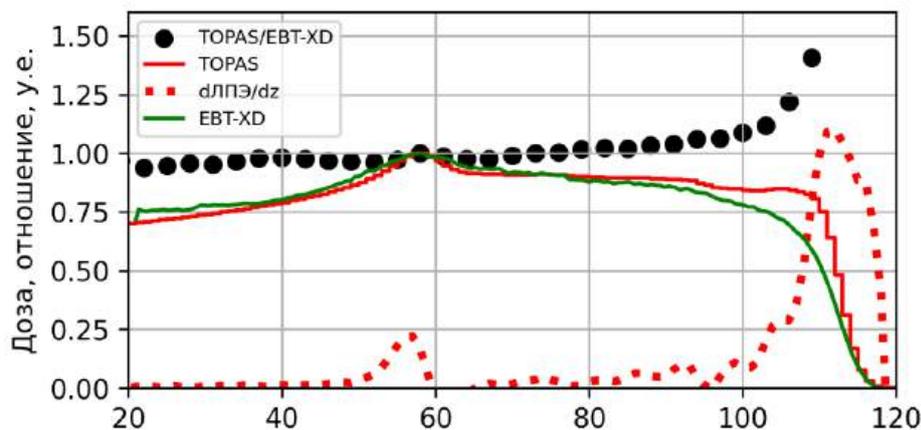


Рисунок 6.6 – Глубинные распределения характеристик пучка протонов для модифицированного пика Брэгга в SPLASH режиме облучения. Обозначения как на рисунке 6.5

В SPLASH режиме облучения недоучёт дозы плёночными детекторами относительно результатов моделирования составил 42%. Тем не менее, радиохромные плёнки являются основным инструментом для определения дозы при облучении объектов в высокоинтенсивных режимах FLASH и SPLASH. Полученные кривые позволяют определить численное значение недоучёта дозы плёночными детекторами в зависимости от глубины облучаемого объекта в воде для введения поправки на это явление при облучении в области модифицированного пика Брэгга.

Данная проблема описана в работе Американской ассоциации физиков в медицине [19] и обширно изучается исследователями в областях протонной и ионной лучевой терапии [20, 21]. Полученные нами результаты по недоучёту дозы плёночными детекторами визуально хорошо согласуются с авторами работы [22], однако нам также удалось пронаблюдать закономерность в схожем поведении глубинных кривых недоучёта и производной ЛПЭ, что открывает возможность для предварительного предсказания области, в которой недоучёт дозы будет максимально значим на пучках протонов и тяжёлых ионов.

6.3. Черенковский монитор

Ранее были проведены исследования по калибровочным измерениям черенковского монитора с импульсным током до 10 мкА, что соответствует конвенциональному режиму облучения [23]. В ходе работы было получено хорошее согласие измерений монитора с показаниями ионизационной камеры и пленочного детектора, радиохромной пленки ЕВТ-ХД (Gafchromic, США). Текущие исследования были посвящены исследованию отклика черенковского монитора во флэш-режиме, представляющем особый интерес.

Калибровочные измерения черенковского монитора протонного пучка проводились на медицинском канале ИЯИ РАН совместно с индукционным датчиком тока протонного пучка. Схема эксперимента представлена на рисунке 6.7.

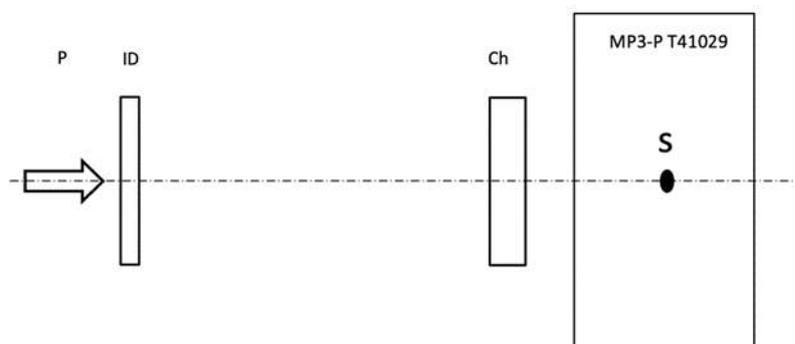


Рисунок 6.7 – Схематическое изображение экспериментального стенда. P – протонный пучок, ID – индукционный датчик тока, Ch – Черенковский монитор, MP3-P – дозиметрический водный фантом

Индукционный датчик тока протонного пучка расположен в вакуумном канале примерно в 15 м от мишени, которая во время проведения радиобиологических исследований помещается в водный фантом MP3-P T41029 (PTW, Германия), в котором протоны останавливаются в области S. Детектор черенковского излучения устанавливается в воздушном зазоре по центру протонного пучка средствами протонной радиографии.

Измеренный детекторами заряд, который получается путем интегрирования мгновенного тока детектора для каждого протонного импульса, пропорционален числу протонов за фракцию облучения, а при неизменной энергии и других параметров пучка протонов – пропорционален поглощенной в мишени дозе.

На рисунке 6.8 показан график зависимости показаний черенковского монитора Ch от заряда, измеренного индукционным датчиком тока ID за каждый импульс ускорителя. Результат аппроксимации измерений линейной зависимостью показан прямой линией. Ошибки измерений не превышают размеры экспериментальных точек на графике.

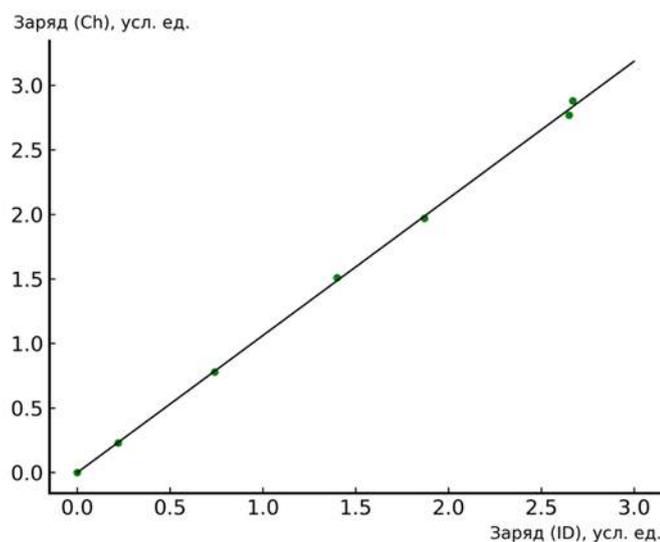


Рисунок 6.8 – График зависимости показаний черенковского монитора Ch от заряда, измеренного индукционным датчиком тока ID за каждый импульс ускорителя

Показания быстрых электронных мониторов ID и Ch (см. рисунок 6.8) хорошо согласуются между собой, что говорит о линейной зависимости показаний черенковского монитора (Ch) от показаний индукционного датчика тока ID. При этом датчик тока ID находился в глубоком вакууме в канале транспортировки пучка, а монитор Ch – на воздухе вблизи мишени. Этот результат подтверждает, что черенковский монитор протонов может быть использован для online контроля поглощенной дозы в протонной флэш-терапии.

7. Подготовка и планирование равномерного облучения биологических объектов в ходе радиобиологических исследований

В рамках данной задачи с целью повышения точности и повторяемости радиобиологических экспериментов на лучевой протонной установке разработана математическая модель этой установки для расчета методом Монте-Карло переноса и взаимодействия излучения со средой на основе примера Hadrontherapy [24] пакета Geant4 версии 10.04.3. Физическая модель задействует для расчетов следующие библиотеки симуляции физических процессов взаимодействия частиц со средой: G4EmStandardPhysics_option4, G4DecayPhysics, G4RadioactiveDecayPhysics, G4IonBinaryCascadePhysics, G4EmExtraPhysics, G4HadronElasticPhysicsHP, G4StoppingPhysics и G4HadronPhysicsQGSP_BIC_HP. Геометрия установки схематически представлена на рисунке 6.7 и включает в себя следующие элементы: стальной коллиматор, содержащий вне пучка борированный полиэтилен для поглощения нейтронного излучения; фигурный рассеиватель с компенсатором потерь энергии; гребенчатый фильтр; водный фантом; мишень, содержащая сборку из 4-х моделированных яиц перепела с оснасткой крепления из органического стекла PMMA. Математическая модель скорлупы и белковой части яиц представляет собой совокупность концентрических полусфероидов, соприкасающихся в центральном сечении. Для имитации заостренного конца яйца полусфероиды имеют вытянутую форму с одной стороны. В области тупого конца в модели учтено наличие воздушной полости. В центре структуры расположена сфера, представляющая желтковую часть. Результатом симуляции с использованием данной модели является распределение поглощенной дозы внутри водного фантома с разбиением на воксели размером $1 \times 1 \times 1$ мм с учетом наличия или отсутствия облучаемого материала (рисунок 7.1).

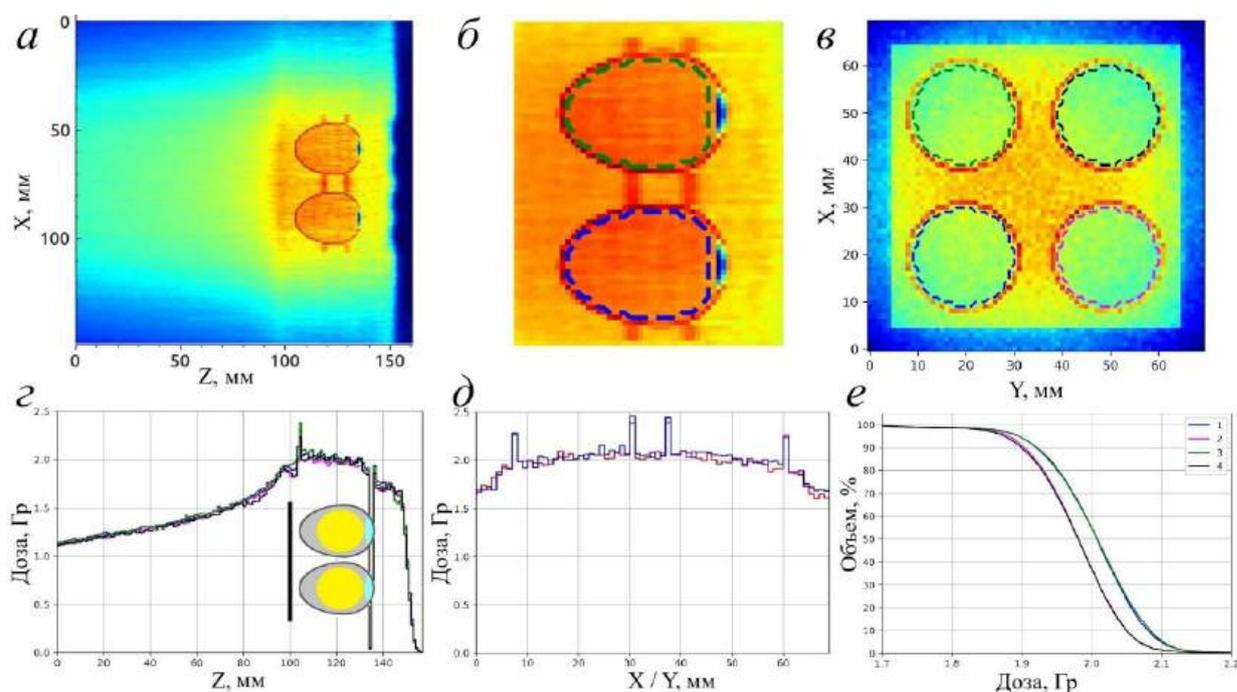


Рисунок 7.1 – Распределение дозы в водном фантоме с образцами: а) в центральной плоскости яиц ZX, общий план; б) в центральной плоскости яиц ZX, крупный план; в) в центральной плоскости яиц XY на глубине центра желтка; г) глубинные кривые дозы в центре каждого яйца; д) поперечные профили дозы в центре яиц; е) гистограммы доза объем каждого образца

Распределение поглощённой дозы демонстрирует равномерность облучения образцов в пределах 5%. Анализ полученных гистограмм доза объем выявил незначительное различие лучевой нагрузки левых и правых по направлению пучка образцов в пределах 1,5%. Данная особенность объясняется наличием асимметрии в конструкции гребчатого фильтра в горизонтальной плоскости. Анализ облученных в ходе экспериментов радиохромных плёнок (рисунок 7.2) также показал наличие незначительной асимметрии поглощённой дозы и однородность облучения в заданной области в пределах 10% для разных образцов, что полностью согласуется с результатами симуляции.

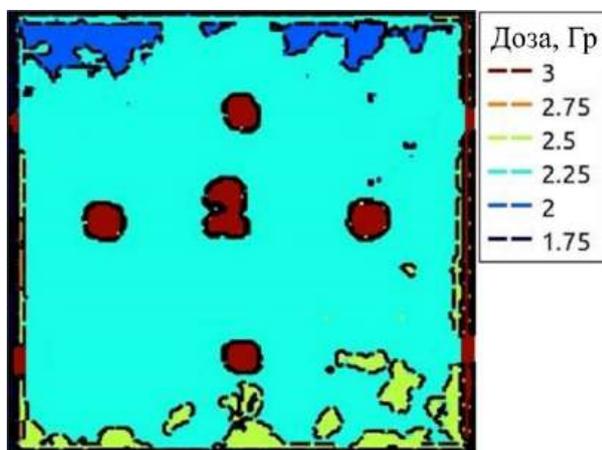


Рисунок 7.2 – Пример результатов обработки радиохромных пленок

8. Облучение и анализ реакции биологических объектов

В отчетном году были проведены исследования облученных клеток с использованием флуоресцентного микроскопа (микроскоп Nexscope 620FL, увеличение 40X.) с использованием следующих методов. В то время как существенно снизилась доступность наборов иностранного производства для детектирования пролиферативного потенциала облученных раковых и нормальных клеток, была проделана работа по подбору условий визуализации делящихся клеток с применением биоорганических реагентов российского производства. Был использован метод включения модифицированных нуклеотидов во время удвоения ДНК, предшествующей делению клеток на две дочерние. Были использованы реактивы фирмы Lumiprobe для мечения методом клик-химии конъюгатами азидов и флуоресцентных красителей клеток, включивших в состав геномной ДНК этинил-дезоксисуридин (EdU) – структурный аналог нуклеотида тимина, несущий алкиновую группу, реакционноспособную в адрес модифицированных азидов. Продуктом мечения становятся клетки, находящиеся в стадии синтеза ДНК или деления. По пропорции окрашенных азидом клеток устанавливается число делящихся клеток в популяции, что при сопоставлении с необлученными клетками позволяет определить, долю клеток, потерявших способность к делению, в приложении к опухолевым клеткам – по прогрессированию опухоли. Также данный метод может быть использован для оценки воспроизводства популяцией опухолевых клеток своей численности при потере во время облучения доли радиочувствительных клеток в популяции и сохранении радиорезистентных клеток, ответственных за рецидивы после лечения лучевой терапией. Методика на российских реактивах существенно более дешевая, чем коммерчески доступные иностранные аналоги, что необходимо для работы с большой статистикой на множестве образцов при построении дозовых кривых. Облучению подвергались два вида клеток: рак толстой кишки HT-29 и ADSC мезенхимальные стволовые клетки жировой ткани человека (фибробласты). Клетки облучались в трех режимах: одноимпульсный флэш-режим (SPLASH), стандартный флэш-режим (FLASH) и конвенциональный режим (CONV). Пробирки с клетками облучались в водном фантоме в области модифицированного пика Брэгга и на пролет. Для флуоресцентной микроскопии были выбраны тесты на репликацию ДНК (EdU тест), окрашивали образцы в лунках 96-луночного планшета в течении пяти суток после облучения с шагом 24 часа. Окрашенные образцы фиксировались с помощью параформальдегида. Подсчет общего количества клеток в кадре производился с помощью добавления красителя *daPI*. Для анализа клеточной гибели использовали красители аннексин для окраски апоптотических клеток и йодистый пропидий для некротических

клеток. Подсчет общего количества клеток в кадре производился фазово-контрастном режиме. Для оценки клеточной гибели клетки в лунках окрашивались через 24 и 48 часов после облучения без фиксации.

Анализ показал, что спустя 24 часа в стандартном и одноимпульсном флэш-режиме облучения обнаруживалась тенденция повышения доли апоптотических клеток НТ-29 по сравнению с конвенциональным режимом. Во всех режимах через 48 часов после облучения наблюдался заметный уровень некроза этих клеток. Также были обнаружены параллельные тренды в уровне репликации ДНК у клеток НТ-29 в течение 120 часов пострadiационного периода.

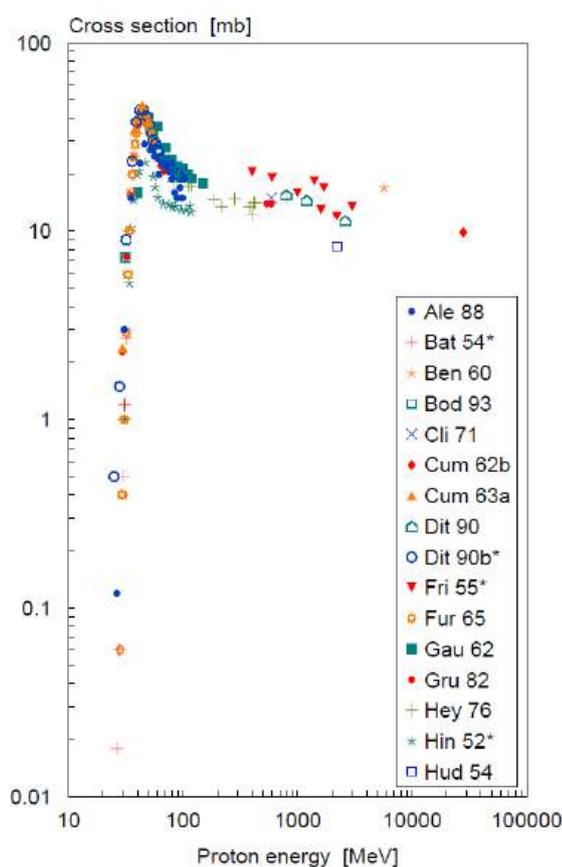


Рисунок 8.1 – Кумулятивные сечения образования натрия-22 при облучении алюминия протонами

Исходя из этого оптимальный диапазон энергий протонов при облучении алюминия на изотопном стенде ускорителя ИЯИ РАН выбран примерно 35-150 МэВ, где кумулятивное сечение составляет от 15 до 45 мбн. (см. рисунок 8.1). Мишень может облучаться как со стартовой энергии в ускорителе 143, так и максимально возможной на Стенде – 158-160 МэВ.

Новая конструкция мишенной сборки выбиралась исходя из необходимости охлаждения каждой алюминиевой пластинки со всех сторон, что является условием использования максимального тока протонов на Стенде – 120-130 мкА.

Разработанная и изготовленная сборка мишеней показана на рисунке 8.2. Она предусматривает облучения сборки алюминиевых мишеней разной толщины – в зависимости от требований заказчика и условий последующей химической переработки. Например, сюда можно помещать в пазы нержавеющей рамки-держателя 6 мишеней по 3 мм каждая + 1 мишень толщиной 2 мм., облучаемых протонами под углом 27° (рисунок 8.3). При этом водяные щели для охлаждения мишени составляют 3 мм.

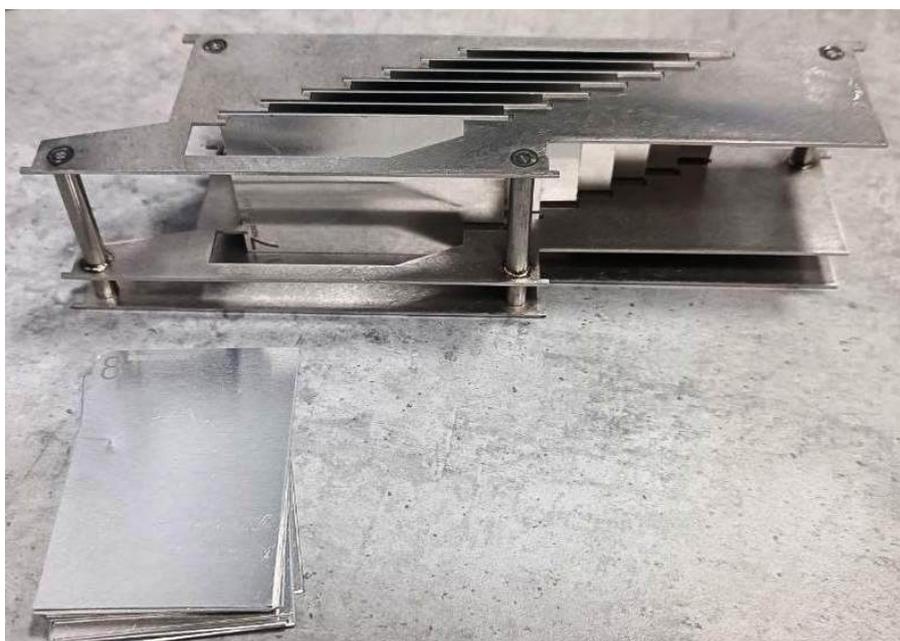


Рисунок 8.2 – Разработанная сборка алюминиевых мишеней для получения натрия-22

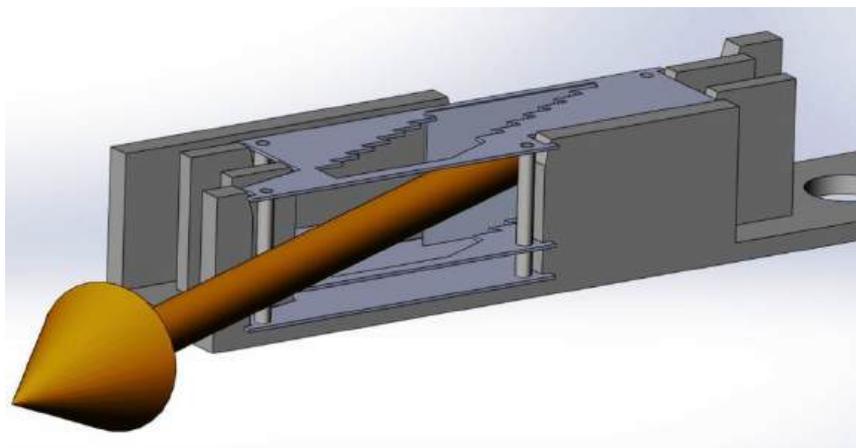


Рисунок 8.3 – Схема облучения алюминиевых пучком протонов под углом 27° на изотопном стенде линейного ускорителя ИЯИ РАН

Такая конструкция дает наработку около 1000 мКи (37 ГБк) натрия-22 примерно за 200 часов непрерывного облучения протонами максимальным током на ускорителе ИЯИ РАН, что обеспечит годовые научные и промышленные потребности России, а также значительную часть экспортных потребностей.

9. Комплексные испытания радиационно-защитных материалов

В соответствии с Нормами пожарной безопасности ГОСТ Р 53264-2019 (см. работу [3]) материалы спецодежды для оценки радиационно-защитных свойств проходят три вида испытаний: первое – проверка ослабления гамма-излучения 122 кэВ изотопа кобальт-57; второе – проверка ослабления бета-излучения до 2 МэВ изотопа стронций-90; третье – проверка на дезактивируемость. В первом и втором случае используются закрытые источники ионизирующих излучений. Такие испытания являются безотходными, считаются "чистыми" и выполняются в ИЯИ РАН в соответствии с лицензией. Приоритет созданного в ИЯИ РАН безопасного способа контроля радиационно-защитных свойств материалов защищён патентом (см. работу [25]).

Третий вид испытаний следует выполнять с использованием открытых радиоактивных источников, он сопровождается получением жидких радиоактивных отходов, нуждающихся в утилизации, что представляет опасность для метрологов и экологии. Испытания на дезактивируемость считаются "грязными" и выполняются в специализированных лабораториях. Таким образом, существующая ситуация отрицательно сказывается на экономических показателях производства СИЗ. Вместе с тем патентный поиск показал, что существуют подходы, позволяющие устранить недостатки "грязных" технологий.

9.1. Безопасные испытания материала СИЗ ионизирующим излучением

Одним из достижений ИЯИ РАН является разработка для промышленности безопасного способа контроля радиационно-защитных материалов с помощью ионизирующего излучения. Обычно такие испытания проводятся с соблюдением требований радиационной безопасности: работы с источниками ионизирующего излучения выполняются в специальном помещении с использованием манипуляторов, применением экранов, защищающих метрологов и окружающую среду. Разработка ИЯИ РАН предлагает использовать для просвечивания материала источники активности меньшую минимально значимой на рабочем месте (МЗА) в сочетании с аппаратурой высокого разрешения, что обеспечивает безопасность персонала и окружающей среды. В настоящее время испытания гамма-излучением проводятся с помощью гамма-спектрометрического комплекса СКС-07П-Г41 в комплекте с детектором БДЭГ2-38-01. Испытания бета-излучением проводятся с помощью радиометра МКС-01Р в комплекте с блоком сцинтилляционного детектора БДКБ 01Р и коллиматором. Испытываются радиационно-защитные материалы, предоставляемые предприятием АО «ПТС». Одновременно отлаживается аппаратура и испытываются методики измерений, обеспечивающих безопасность измерений. В

соответствии с договором №2/2022 и дополнительным соглашением между ИЯИ РАН и АО «ПТС» в 2024 г. проведены испытания двух партий материалов, что зафиксировано в отчетах испытаний.

9.2. Имитация радиоактивного загрязнения для оценки дезактивируемости СИЗ

Как указывалось, материал верхней оболочки СИЗ должны проверяться на дезактивируемость в соответствии с требованием ГОСТ Р 53264-2019 (см. работу [3]). Метод определения дезактивируемости, установленный ГОСТ 27708-88 «Материалы и покрытия полимерные защитные дезактивируемые», основан на измерении уровней радиоактивного загрязнения образцов до и после дезактивации с использованием радиоактивных веществ открытого типа. При этом необходимо обеспечить радиационную безопасность по правилам, установленным для работ с открытыми радиоактивными веществами, проводить утилизацию радиоактивных отходов, которые накапливаются в течение измерений. Изложенные особенности метода отрицательно сказываются на экологии, экономических показателях, что служит серьёзным препятствием для применения в легкой промышленности. Существующий способ оценки дезактивируемости материалов связан с физикой твёрдого тела, поверхностными явлениями, а коэффициент дезактивации является одним из показателей адгезии – сцепления, твёрдых пылевидных частиц и поверхности материала.

Проверка на дезактивируемость по существующим правилам в ИЯИ РАН не производится, однако исследования показали, что коэффициент дезактивации как параметр радиационно-защитных свойств материалов, который обычно измеряется с применением моющих средств и радиационно опасных препаратов открытого типа, предлагается оценивать новым безопасным способом с использованием имитации – замены опасного компонента измерения на безопасный. При этом испытания проводятся в неизменных рамках данного физического явления – адгезии. При новом способе имитируется радиоактивное загрязнение путём нанесения на испытываемую поверхность безвредного пылевидного вещества, а адгезия определяется методом липкой ленты. Испытание основано на снятии с поверхности образца трёх слепков. Слепок №1 снимают с поверхности образца перед нанесением загрязнителя как параметр фона, слепок №2 – после загрязнения поверхности перед промывкой, слепок №3 – с загрязнённой поверхности после промывки. Для обработки изображений, зафиксированных на липких лентах, используются элементы искусственного интеллекта, компьютерного приложения, разработанного под задачу К.Л. Белянским, вед. инж.-программистом Сектора информационных и вычислительных систем. Изображения слепков преобразуются в цифровую форму и

анализируются с помощью искусственного интеллекта для вычисления средних показателей загрязнённости фона (M_f), исходной загрязнённости образца (M_i) и загрязнённости образца, обработанного моющим средством (M_o). В итоге вычисляется показатель адгезии: $K_a = (M_i - M_f) / (M_o - M_f)$, который используется для оценки дезактивируемости материала СИЗ.

В ходе экспериментов с использованием одного и того же материала показатели адгезии, полученные методом имитации, отличаются от показателей дезактивируемости, измеренных обычным способом с использованием радиоактивных веществ, на 20%, т.е. находятся в удовлетворительном согласии. Разница может образовываться от влияния нескольких факторов, например, погрешности радиометра, эффективности моющего средства, интенсивности промывки. О новом безопасном способе оценки дезактивируемости материалов с помощью имитации подробно изложено в работе [26].

По материалам патентного поиска, проведённого в данном направлении, Отделом интеллектуальной собственности ИЯИ РАН оформлена заявка на патент № 2024134034 от 14.11.2024 г. «Способ безопасной оценки дезактивируемости материалов для средств индивидуальной защиты (СИЗ)» (авторы – М.Н. Лифанов, ст.науч.сотр ИЯИ РАН и К.Л. Белянский, вед. инженер ИЯИ РАН). В настоящее время заявка находится на экспертизе ФИПС.

10. Активационные испытания многокомпонентных материалов

10.1. Спектрометрия рентгеновского излучения радиационно-защитных материалов

При исследовании характеристик многокомпонентных материалов, применяемых для создания индивидуальных защитных средств необходимо развивать новые методы неразрушающего контроля функциональных свойств радиационно-защитных материалов. Кроме измерения поглощения β - и γ -излучений материалом важно определять характеристики вторичного рентгеновского характеристического излучения, возникающего при активации компонент РЗМ внешним радиационным излучением.

По энергии и интенсивности характеристического излучения можно однозначно установить элементный состав и концентрацию компонент материала. Измеренный с помощью германиевого детектора спектр характеристическое излучение радиационно-защитного материала со свинцовой поглощающей компонентой представлен на рисунке 10.1.

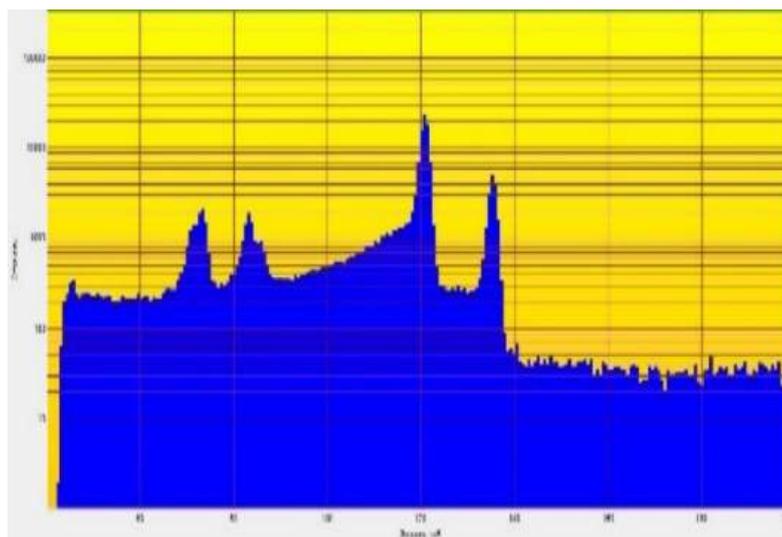


Рисунок 10.1 – Спектр фотонов характеристического рентгеновского излучения образца защитного материала и от закрытого источника ^{57}Co с энергией 122,06 кэВ; 136,47 кэВ; измеренный на Ge-детекторе

На рисунке 10.2 представлен спектр фотонов рентгеновского излучения от 1 мм свинцовой пластины.

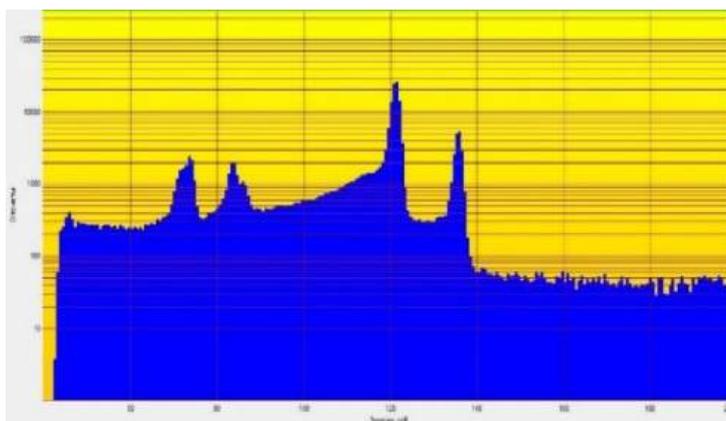


Рисунок 10.2 – Спектр фотонов характеристического излучения РЬ пластины и от закрытого источника ^{57}Co

Характеристическое рентгеновского излучение может давать существенный вклад в локальную дозу на поверхности РЗМ и существенно влиять на облучение персонала в РЗК, например с висмутовой компонентой (см. рисунок 10.3).

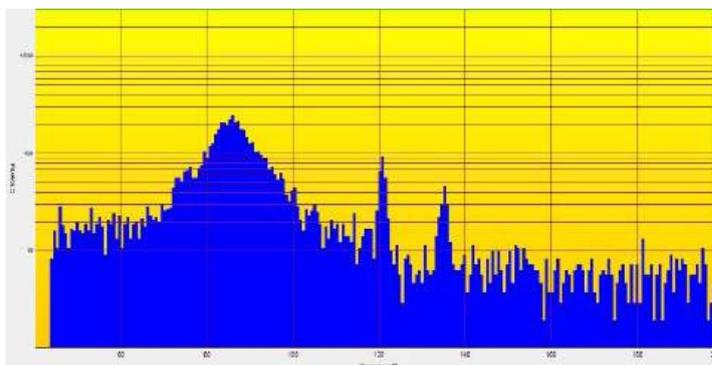


Рисунок 10.3 – Спектр фотонов рентгеновского излучения Вi и от закрытого источника ^{57}Co

Характеристическое рентгеновское излучение Вi на внутренней поверхности образца на порядок выше остаточного непоглощенного излучения от источника ^{57}Co и локальная доза облучения больше.

Распределение тяжелой компоненты внутри материала влияет на дозовое распределение излучение в РЗМ. Радиоактивные методы широко применяются для экспертного анализа многокомпонентных сред.

Коэффициенты поглощения гамма- и бета-излучений от закрытых лабораторных радионуклидных источников ^{57}Co и $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$ измеряются с помощью гамма-спектрометрического комплекса СКС-07П-Г41 и радиометра МКС-01Р.

Определение элементного и количественного состава поглощающей компоненты РЗМ выполняется с помощью гамма-спектрометрического комплекса СКС-07П-Г41 по анализу гамма- и рентгеновских спектров вторичного излучения от поглощающей компоненты материала.

11. Исследование аномального электромагнетизма в углеродных конденсатах

11.1. Сверхпроводящие корреляции в графитовых пленках

В последнее время проявляется значительный интерес к электромагнитным свойствам наноструктур. В теоретическом плане знаменательны работы В.З.Кресина и Ю.Н.Овчинникова [27, 28] по гигантскому усилению сверхпроводящего спаривания в металлических нанокластерах. В теоретической работе К.Н.Югай [29] описаны особенности сверхпроводимости нанокластеров. В низкоразмерных системах необходимо учитывать граничные эффекты, которые начинают играть фундаментальную роль. Если в объёмных системах на электрон со стороны ионов действуют в среднем одинаковые, но разнонаправленные силы, то на границе эта симметрия нарушается. На электрон, находящийся, скажем, на левой границе нанокластера, действует кулоновская сила притяжения со стороны ионов, направленная от границы вправо вглубь системы. С другой стороны, на электрон, находящийся на правой границе нанокластера, действует такая же кулоновская сила, направленная от границы вглубь системы, т. е. справа налево. Таким образом, электроны на левой и правой границе системы эффективно притягиваются между собой. Показано, что сверхпроводящее спаривание в указанной системе может сохраняться при температурах выше 300°K.

Исследования графитовых пленок, проведенные в течение около 30 лет [30-35], продемонстрировали наличие т.н. «слабой сверхпроводимости» при комнатной температуре и даже выше вплоть до 650°K (см. рисунок 11.1).

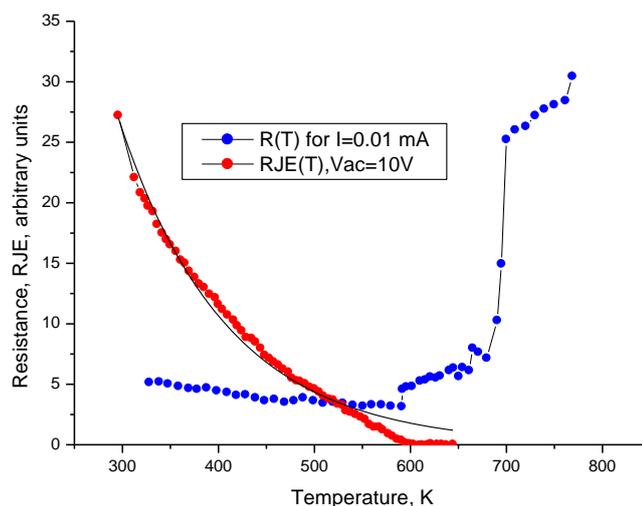


Рисунок 11.1 – Температурная зависимость обратного эффекта Джозефсона. Напряжение постоянного тока, индуцированное микроволновым сигналом, обнуляется при $T=650\text{K}$. Вместе с зависимостью $V_{dc}(T)$ приведена зависимость $R(T)$. Кривая $V_{dc}(T)$ аппроксимирована экспоненциальной зависимостью, что подтверждает экспоненциальность зависимости $V_{dc}(T)$. $R(T)$ не стремится к нулю в районе T_c из-за относительно высокого тока измерений, т.к. критический ток составляет $0,8\text{ мкА}$. Сопротивление НГ пленки на постоянном токе зависит от размера межконтактного расстояния, а также величины транспортного тока и колеблется в диапазоне $5\text{--}500\text{ Ом}$. При температуре ниже 650K электросопротивление определяется смешанной сверхпроводящей фазой, и, если бы удалось померить зависимость $R(T)$ на токе менее $0,8\text{ мкА}$, при $T < 700\text{K}$ произошло бы падение сопротивления до нуля. К сожалению, по-видимому, это невозможно из-за термофлуктуаций тока.

Данный результат получен при исследовании температурной зависимости обратного эффекта Джозефсона: наведении постоянного напряжения при воздействии СВЧ сигнала. Картина аналогична процессам, многократно зафиксированным при исследованиях традиционных низкотемпературных [36] и высокотемпературных [37] сверхпроводников.

Согласно имеющимся экспериментальным данным [38] нанографитовые пленки представляют собой наноразмерные графитовые гранулы, размером $30\text{--}50\text{ \AA}$, внедренные в матрицу аморфного углерода. Наличие слабой сверхпроводимости может свидетельствовать о существовании сетки сверхпроводящих гранул в несверхпроводящей матрице. При этом возможны варианты объединения сверхпроводящих гранул в единый сверхпроводящий кластер или изолированных сверхпроводящих гранул. Детектирование постоянного напряжения на гранулярной структуре при облучении ее переменным электромагнитным излучением является сущностью нестационарного обратного эффекта Джозефсона. Данный эффект предполагает образование единого сверхпроводящего кластера с общей фазовой когерентностью, сохраняющейся при достаточно низких протекающих токах, когда структура магнитных вихрей, обнаруженная в нанографитовых пленках (см. рисунок 11.2), остается неподвижной при относительно слабых силах

Лоренца, не способных оторвать вихри от центров пиннинга. При более высоких токах силы Лоренца отрывают вихревую решетку от центров пиннинга, структура вихрей приходит в движение, растет электросопротивление, общая фазовая когерентность разрушается и сверхпроводимость исчезает.

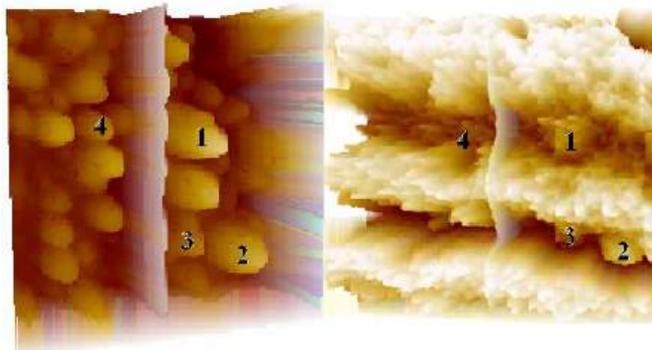


Рисунок 11.2 – Структура магнитных вихрей, зарегистрированная с помощью магнитно-силового микроскопа на локальном участке размером $0,5 \times 0,5 \text{ мкм}^2$ нанографитовой пленки при комнатной температуре. Слева расположено изображение АСМ топографии, справа – соответствующее МСМ изображение магнитной структуры. Направление вихрей перпендикулярно плоскости рисунка, черными кружками с цифрами указано расположение конусообразных выпуклостей на поверхности НГ пленки, справа соответствующими цифрами обозначены их магнитные изображения. Черные широкие полосы справа – экранирующие токи

Другим проявлением сверхпроводящей когерентности нанографитовой структуры стало бы наблюдение стационарного эффекта Джозефсона, т.е. протекания сверхпроводящего тока при нулевом напряжении. На рисунке 11.3 представлена схема измерения вольтамперной характеристики (ВАХ) контакта сверхпроводник – изолятор – сверхпроводник (SIS).

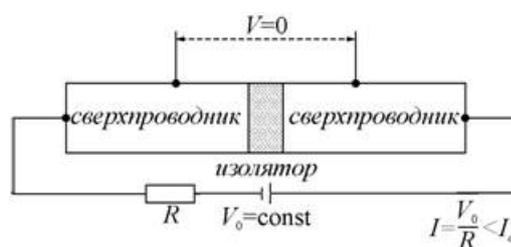


Рисунок 11.3 – Схема измерения ВАХ контакта сверхпроводник – изолятор – сверхпроводник

При отсутствии нагрузочного сопротивления, в качестве которого выступает сопротивление измерительного прибора, ток через контакт будет течь при отсутствии напряжения. Однако при измерении вольтметр покажет ненулевое напряжение $V = IR_N$ при $I < I_c$, где I_c – критический ток джозефсоновского контакта, а R_N – внутреннее сопротивление измерительного прибора. При $I > I_c$ ВАХ становится омической. Результаты измерения

представлены во вставке на рисунке 11.4. Для измерения ВАХ использовался источник-измеритель на основе Keithley4200. Измерения проводились по 4-проводной схеме (Кельвина) с использованием триаксиального кабеля и 4-х позиционеров и зондов Кельвина, а также зондовой станции. Зондовая станция необходима для закрепления образца (пластины), фиксации измерительных зондов с манипуляторами и микроскопа, чтобы визуально можно позиционировать концы зондов на контактные площадки образца.

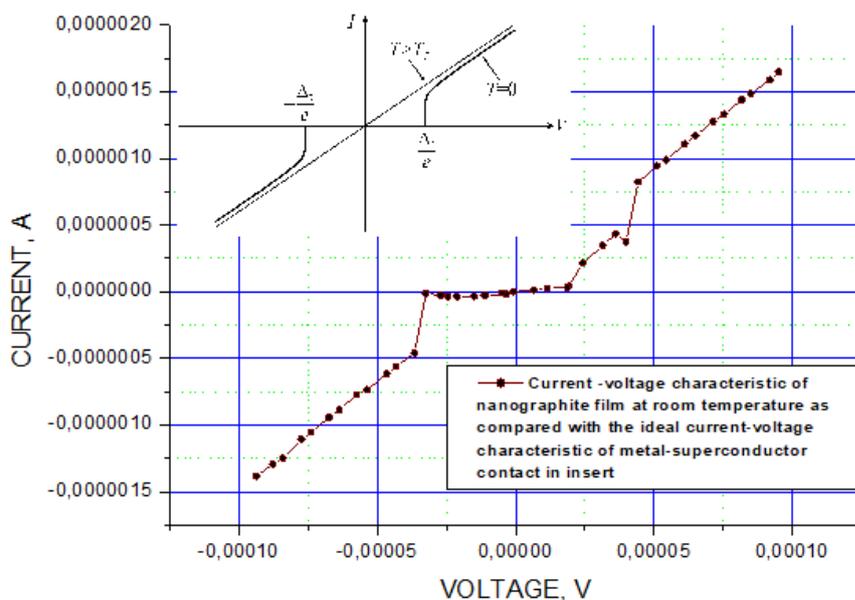


Рисунок 11.4 – ВАХ нанографитовой пленки при малых токах и комнатной температуре

В основной рамке рисунка 11.4 представлена экспериментальная ВАХ нанографитовой пленки, измеренная при комнатной температуре. Две указанные ВАХ подобны. Разница состоит в значении напряжения перехода ВАХ на омическую ветвь. Для нанографитовой пленки эта величина не равна значению сверхпроводящей щели, поскольку напряжение перехода соответствует началу движения магнитных вихрей при отрыве их от центров пиннинга.

Наблюдение джозефсоновского тока 0,8 мкА при комнатной температуре можно рассматривать в качестве нижней границы сверхпроводящей фазы в НГ пленках. Верхняя граница задается температурой 650К, полученной в эксперименте по обратному эффекту Джозефсона, изображенному на рисунке 11.1. В промежутке между указанными температурами, весьма вероятно, существует фаза со смешанной сверхпроводимостью.

Полученное значение джозефсоновского тока на рисунке 11.4 очень мало по сравнению, как с величиной сверхпроводящей щели, так и с током распаривания. Увеличение критического тока можно ожидать после облучения нанографитовой пленки в

пучках ионов, создающих колонковые дефекты – цилиндрические области изолятора, пересекающие пленку по толщине и являющиеся эффективными центрами пиннинга магнитных вихрей. Как показано в работах [39-41], при диаметре колонковых дефектов близких по размеру к длине когерентности ξ , ток депиннинга составляет:

$$j_d = 0,252 \cdot \frac{a^2 e H_{cm}^2}{\pi h \xi} = 10^9 \text{ А/м}^2 \quad (1)$$

где a – радиус цилиндрического дефекта, H_{cm} – термодинамическое критическое поле, e – заряд электрона. Указанная величина на 7 порядков превышает критический ток на рисунке 10.4, что открывает перспективу увеличения критических токов нанографитовых пленок при ионном облучении.

При исследовании проводимости нанографитовых пленок обнаружено возникновение скачкообразного увеличения удельного электросопротивления на ~4-6 порядков величины из-за увеличения транспортного тока до некоторой критической величины [31]. Критический транспортный ток снижается с температурой и в комнатных условиях имеет значения 5-500 мА (в зависимости от условий осаждения НГ пленки, размеров образца и подводющих контактов) при постоянном напряжении в диапазоне 5 - 100 В. Вольтамперная характеристика и электрические коммутационные процессы в НГ пленке представлены на рисунке 11.5. Как видно, наряду с желтой кривой тока показаны красная кривая напряжения и зеленая – мощности. Особенностью состояния «ВКЛ» является линейное возрастание тока с ростом напряжения на пред коммутационной стадии. Вблизи точки переключения ток проявляет некоторую нелинейность. В точке переключения ток резко переходит в метастабильное состояние «ВЫКЛ», где удельное электрическое сопротивление выше, чем в состоянии «ВКЛ» на четыре-шесть порядков величины. После отключения напряжения образец возвращается в состояние «ВКЛ» с малым удельным сопротивлением, и переключатель может работать повторно. Механизм переключения проводимости в нанографитовых пленках обсуждается уже много лет [31–35], и, похоже, только сейчас это обсуждение может быть завершено; подробности приведены ниже.

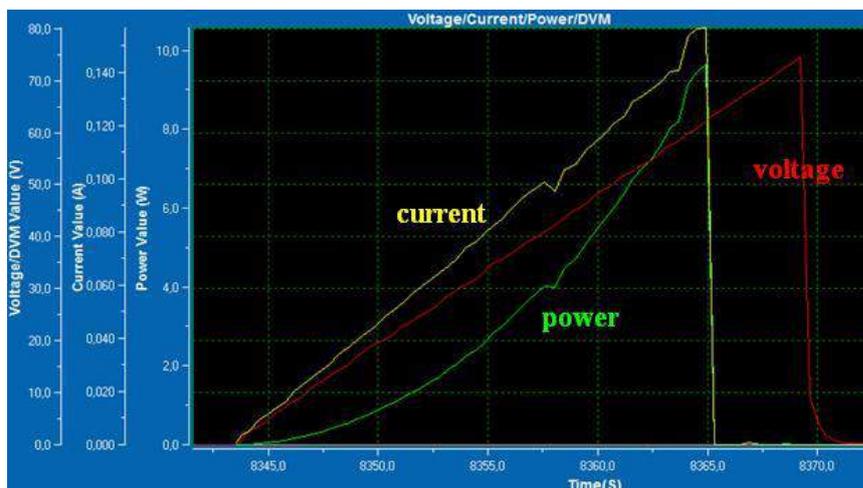


Рисунок 11.5 – ВАХ НГ пленки толщиной 1 мкм на кварцевой подложке при комнатной температуре. Как видно, отключение тока предшествует отключению напряжения, т.е. отключение происходит по внутренней причине, однозначно связанной исключительно с величиной тока

Процесс переключения в нанографитовой пленке сопровождается резким повышением температуры, что вызывает оптическое излучение. Это излучение регистрировалось с помощью фотодиода [42]. Схема регистрации оптических импульсов показана на рисунке 11.6. Зависимость напряжения фотодиода от времени регистрации показана на рисунке 11.7. Как видно, зарегистрированные энергии оптических импульсов располагаются на дискретных уровнях энергии с фиксированным расстоянием между ними $\Delta E = 0,0022097$ эВ, что соответствует частоте излучения $0,53 \times 10^{12}$ Гц. Точная фиксация уровней до седьмого знака указывает на когерентность излучения и его аналогию с уровнями Ландау [35].

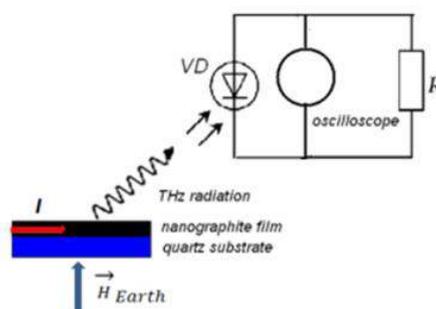


Рисунок 11.6 – Схема регистрации оптических импульсов

На рисунке 11.7 видно, что импульсы разделены интервалами $\Delta t = 5 \times 10^{-6}$ сек. Периодическое появление оптических импульсов можно объяснить движением квантов магнитного потока, связанным с захватом магнитного поля Земли протекающим током в

НГ пленке. При толщине НГ пленки 1 мкм скорость движения квантов магнитного потока за счет влияния магнитного поля Земли составляет 0,2 м/сек.

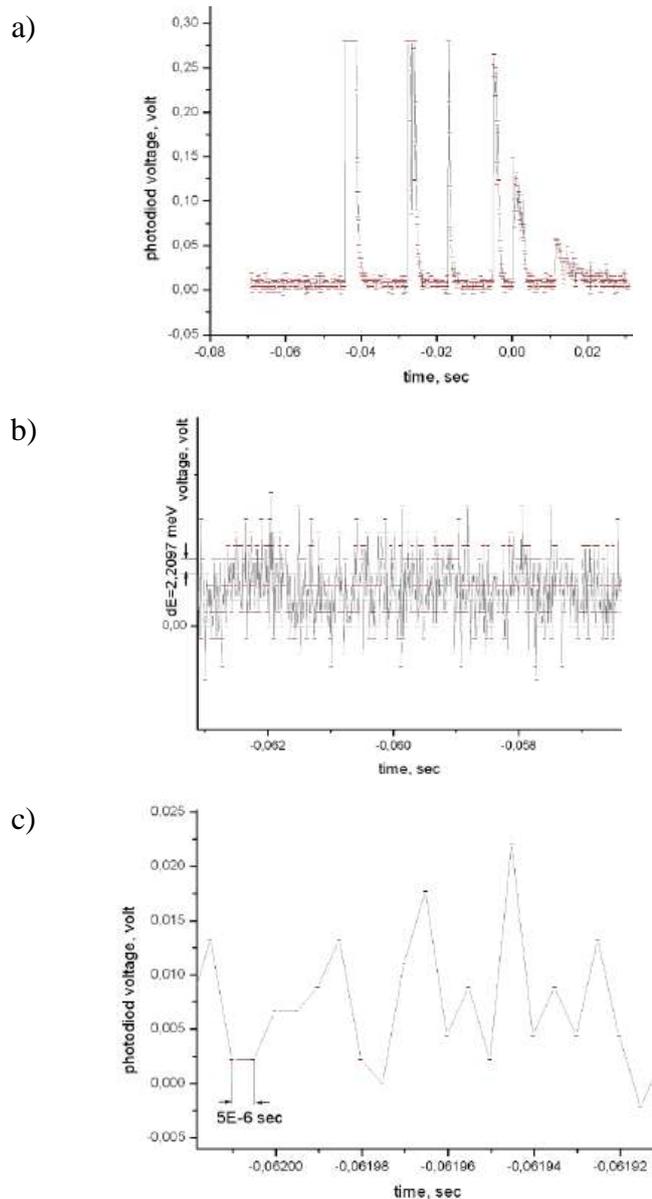


Рисунок 11.7 – Зависимость напряжения на фотодиоде от времени регистрации, а) общий вид зависимости, б) участок графика а) при увеличении, позволяющем увидеть линейчатую структуру энергетического спектра, в) график при максимальном увеличении, позволяющий увидеть временную структуру зависимости напряжения на фотодиоде от времени $V(t)$. Видно, что минимальное расстояние между точками испускания оптических импульсов составляет 5 мксек. Регулярное испускание импульсов с интервалом 5 мксек предполагает движение магнитных вихрей по толщине НГ пленки со скоростью 0,2 м/сек

Резкие оптические скачки на рисунке 11.7а соответствуют магнитным импульсам лавинообразного магнитного потока, возникающего из-за термомагнитной неустойчивости [43]. Для проверки гипотезы термомагнитной неустойчивости проанализируем рисунок 11.7 более подробно. Определим отношение коэффициентов магнитной D_m и тепловой D_t диффузии:

$$\tau = \frac{D_m}{D_t} = \frac{\mu_0 \sigma K}{C}, \quad (1)$$

где $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Гм}^{-1}$ – магнитная постоянная, $\sigma = 100 \text{ Ом}^{-1}\text{м}^{-1}$ – проводимость, $K = 130 \text{ Вт}\cdot\text{м}^{-1}\text{К}^{-1}$ – теплопроводность, $C = 7 \cdot 10^5 \text{ Дж}\cdot\text{м}^{-3}\text{К}^{-1}$ – теплоемкость нанографитовой пленки, тогда $\tau \cong 10^{-8} \ll 1$. Это соответствует случаю жесткого сверхпроводника с вязким магнитным потоком, когда время изменения магнитного потока много меньше времени изменения температуры. Что очень важно, в адиабатическом режиме работы нанографитовой пленки тепло, создаваемое резким изменением магнитного потока, выделяется мгновенно и локально и не может диффундировать из-за охлаждения в рассматриваемом масштабе времени. Как видно из рисунка 11.7а, размеры магнитных лавин превышают 0,3 эВ по энергетической шкале. Магнитный поток в НГ пленке, соответствующий границе области терромагнитной устойчивости, можно определить с помощью выражения [43]:

$$B \leq \frac{\pi}{2} \sqrt{\mu_0 T_c C (T_c) \left(\frac{T_0}{T_c}\right)^3 \left(1 - \frac{T_0}{T_c}\right)}, \quad (2)$$

где T_0 – температура окружающей среды, магнитная индукция B определяется количеством уровней Ландау в данной точке рисунка 7а. Оценка выражения (2) дает $B \leq 5,44 \text{ Т}$. Магнитное поле ΔB , соответствующее минимальной разности энергий между уровнями Ландау $\Delta E = 0,0022097 \text{ эВ}$, определяется известным выражением:

$$\Delta B = \frac{\Delta E m_e^*}{e \hbar} = 0,66 \text{ Т}, \quad (3)$$

где $m_e^* = 0,03 m_e$ – эффективная масса электрона, e – заряд электрона, \hbar – постоянная Планка. Расчет уровней Ландау до начала лавин магнитного потока на рисунке 11.7а дает значение магнитного потока $B_l = 5,4 \text{ Тл}$, что согласуется с оценкой по соотношению (2).

В новой фазе исследований данные по магнитным потокам в нанографитовой пленке во время переключения проводимости будут проверены экспериментальными измерениями.

Исходя из адиабатичности скачка магнитной лавины, можно предположить, что вся ее энергия преобразуется в теплоту, которая выделяется мгновенно и локально, тогда повышение температуры в первой лавине T_j на рисунке 11.7а превысит значение (из-за насыщения сигнала фотодиода, окончательная величина скачка не определена):

$$T_j > E_{max} / k_B \cong 3500 \text{ К}, \quad (4)$$

где $E_{max} = 0,3 \text{ эВ}$ – максимальная энергия, регистрируемая фотодиодом, k_B – постоянная Больцмана. Как видно на рисунке 11.7а, оптический импульс вводит фотодиод в режим насыщения, поэтому максимальная энергия лавины, а значит, и температура могут быть выше. И только малая длительность импульса не приводит к плавлению кварцевой

подложки. Результирующая температура вызывает мгновенный коллапс сверхпроводимости в графитовой пленке.

Существенной особенностью процесса переключения в графитовых пленках является выгорание материала в малой точке непосредственно под контактом питания. Локальность процесса по величине и времени свидетельствует против наивного термического механизма горения. Другой причиной могут быть вихревые магнитные лавины, которые всегда начинаются на поверхности пленки [44].

Принципиальная возможность сверхпроводимости при комнатной температуре, а возможно, и при более высоких температурах, вплоть до 650К (см. рисунок 11.1), предполагает возможность существования смешанной фазы, состоящей из движущейся вихревой решетки и одиночных вихрей. В такой фазе существуют как нормальные области ядер вихрей, так и их сверхпроводящие токи на периферии вихрей. Смешанная фаза очень стабильна и разрушается либо при достижении критической температуры 650К, либо при критическом токе, который намного превышает ток 0,8 мкА на рисунке 11.4 и может достигать сотен ампер. В этом случае появляется возможность объяснить скачок сопротивления на рисунке 11.5 разрушением смешанной фазы. А так как скачок сопротивления происходит при токе всего лишь 0,15 А, что заведомо ниже возможной величины в сотни ампер, то можно предположить, что разрушение смешанной фазы на рисунке 11.5 происходит при превышении критической температуры. Действительно, простые оценки показывают, что температура на рисунке 11.5 может достигать 1000К. Эта оценка не учитывает наличие сверхпроводящей фазы. Ее наличие можно учесть, решив уравнение теплопроводности с отводом тепла за счет излучения.

$$T(R) = \left(\frac{P}{2\alpha\sigma} + T_0^4 \right)^{\frac{1}{4}} \quad (5)$$

где $P=I \cdot V=I^2R$ – мощность тепловыделения электрического тока в НГ пленке, R – сопротивление смешанной сверхпроводящей фазы, I – ток, протекающий между контактами графитовой пленки, V – напряжение на контактах пленки, α – коэффициент излучения графитовой пленки ($\cong 1$), $\sigma=5,67 \cdot 10^{-12}$ Вт/см²/К⁴ – постоянная Стефана-Больцмана, $T_0 \cong 300$ К – температура окружающей среды. Как видно из представленного выражения (6), температура НГ пленки линейно зависит от сопротивления смешанной фазы в пленке. Описание смешанной фазы в сверхпроводниках второго рода дано в работе [45], где показано, что сопротивление смешанной сверхпроводящей фазы R_m связано с сопротивлением нормальной фазы R_n соотношением:

$$R_m \cong 1.1 R_n B/H_{C2}(T = 0) \quad (6)$$

где B – магнитная индукция внутри НГ пленки. В выражении (6) единственной неопределенной величиной является внутренняя магнитная индукция B , которую можно оценить по числу уровней Ландау на вставке рисунка 11.7. Переход на следующий более высокий уровень Ландау увеличивает магнитную индукцию на величину:

$$\Delta B = \frac{\Delta E m_e^*}{e \hbar} \quad (7)$$

Оценка выражения (7) дает $\Delta B \cong 0,6\text{Т}$, а количество уровней Ландау $\cong 8-10$, тогда $R_m \cong 0,07-0,13R_n$. Подставляя значение R_m вместо R в выражение (6), получаем $T=522-609\text{К}$ и соответствующий сверхпроводящий критический ток для случая однородного сверхпроводника из теории Гинзбурга-Ландау для тонкой пленки вблизи критической температуры будет $I_c = I_c(0)(1-T/T_c)^{3/2}$ [46] в диапазоне $(0,0874 - 0,0162) I_c$, где $I_c = 10^9 \text{ А/м}^2$ [47]. При размерах питающих контактов около 2 мм^2 для НГ пленки толщиной 1 мкм критический ток будет в пределах $0,175 - 0,0324 \text{ А}$, что согласуется с экспериментальным значением $0,15\text{А}$ на рисунке 11.5. Как видно, критический ток переключателя увеличивается с увеличением размеров питающих контактов.

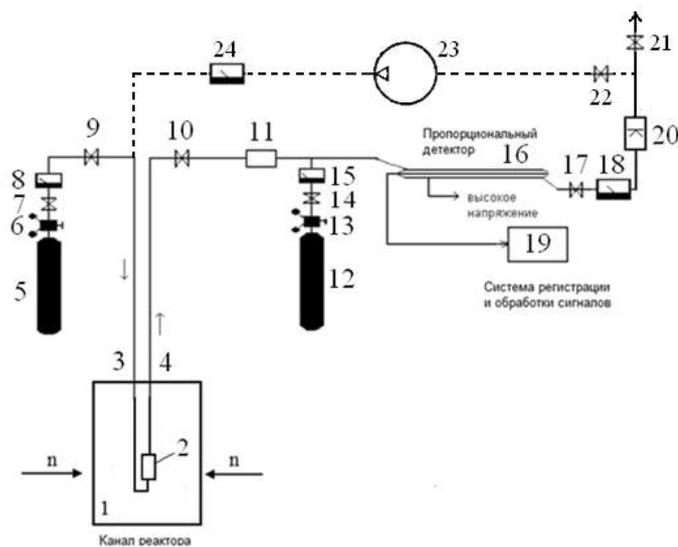
Наличие смешанной фазы при температурах до 650К позволит использовать нанографитовую пленку во многих приложениях для снижения тепловыделения, например, при покрытии такой пленкой внутренней поверхности резонаторов протонных и ионных ускорителей. На основе проведенных в 2024 году исследований был получен патент РФ № 2825236 С.Г. Лебедев «Способ нанографитового пленочного покрытия с пониженным энерговыделением».

12. Разработка перспективных методов детектирования нейтронов и протонов

Задача внедрения в практическое применение проточного газового радиохимического метода детектирования нейтронов находится в разработке в течение нескольких лет и имеет весьма важные практические применения, которые проявились в последние годы – детекторы и мониторы нейтронных потоков и их пространственных распределений, детекторы радиоактивных веществ, термометры термоядерной плазмы. По тематике задачи получено 3 патента РФ.

12.1. Монитор нейтронного потока для реактора ПИК

В 2024 году проводилась разработка газового радиохимического монитора нейтронного потока для реактора ПИК. Особенность такого монитора состоит в том, что он должен регистрировать рекордный нейтронный поток с плотностью до 10^{15} н/см²/сек в очень небольшом по габаритам экспериментальном канале реактора ПИК. Особенностью технологии является пространственное разделение области детектирования нейтронов посредством (n, α)-реакций с образованием инертных радиоактивных газов с последующей их транспортировкой с помощью транспортного газа He в удаленную от активной зоны и защищенную область, где расположен проточный счетчик регистрации распадов образовавшегося радиоактивного газа ³⁷Ar. В такой постановке технология позволяет резко снизить фоновую нагрузку счетчика от γ-квантов и других конкурирующих процессов. Для размещения ампулы детектора в узком технологическом канале ядерного реактора ПИК ее размеры должны быть достаточно малы, что позволяет использовать малое количество активного вещества оксалата кальция в ампуле детектора. Небольшое количество активного вещества в ампуле детектора, кроме того, уменьшит нагрузку на считывающую электронику. Фактически предельные размеры ампулы детектора можно считать «точечными», и такие ампулы можно использовать для получения пространственного распределения нейтронного потока вдоль активной зоны высокопоточного ядерного реактора. В проточном газовом радиохимическом мониторе используется свойство свободного выхода атомов инертного радиоактивного газа ³⁷Ar, образующихся в ядерной реакции ⁴⁰Ca(n,α)³⁷Ar, из кристаллической решетки оксалата кальция CaC₂O₄. Схема газового тракта радиохимического нейтронного монитора представлена на рисунке 12.1.



Обозначения на схеме: 1 – канал реактора, 2 – микроампула детектора, 3 – трубка входного потока He, 4 – трубка выходного потока смеси He с радиоактивным аргонном, 5, 12 – баллоны He и гасящей добавки CH₄ соответственно, 6, 13 – регуляторы давления, 7, 9, 10, 14, 17, 21, 22 – регуляторы расхода газа, 8, 15, 18, 24 – расходомеры, 11 – геттер, 16 – пропорциональный счетчик, 19 - система регистрации и обработки сигналов, 20 – азотная ловушка, 23 – насос – компрессор

Рисунок 12.1 – Схема газового тракта проточного радиохимического монитора нейтронов

В стационарном режиме облучения ампулы (при постоянном потоке ионизирующего излучения Φ и постоянном расходе L газа-носителя) вся вновь образовавшаяся активность сверх равновесной удаляется из объема ампулы потоком газа-носителя. Поэтому скорость счета распадов в смеси радиоактивного газа с газом-носителем связана с потоком ионизирующего излучения известным соотношением [48].

Данные по скорости счета микроампулы в зависимости от объема микроампулы V_a и расхода транспортного газа L для потока быстрых нейтронов $\Phi=1,25 \times 10^{15} \text{ см}^{-2} \text{ сек}^{-1}$ с энергией $E > 0,8 \text{ МэВ}$ в центре АЗ реактора ПИК представлены на рисунке 12.2.

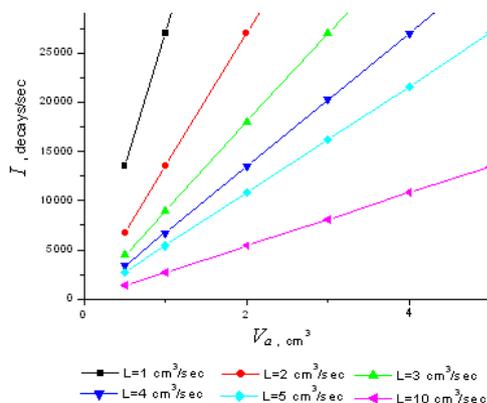


Рисунок 12.2 – Семейство зависимостей скорости счета распадов I от объема ампулы детектора V_a для различных значений расхода транспортного газа L

Как видно из рисунка 12.2, увеличение расхода транспортного газа L и уменьшение объема ампулы детектора V_a уменьшает скорость счета распадов. Данные обстоятельства являются благоприятными для регистрации рекордных нейтронных потоков в центрах АЗ высокопоточных ядерных реакторов, причем эти потоки могут быть зарегистрированы чрезвычайно малыми, буквально «точечными» детектирующими ампулами. По итогам данного рассмотрения была написана статья “Point-Like Neutron Monitor for the High-Flux Nuclear and Thermonuclear Reactors” и в 2024 г. принята к публикации в журнале «Journal of Applied Surface Science».

13. Поиск вариаций потока тепловых нейтронов в подземной лаборатории НЛГЗ-4900 в БНО ИЯИ РАН, связанных с солнечными и лунными приливными эффектами, метеорологическими условиями, сейсмической активностью в регионе

Поток нейтронов в подземных лабораториях является критическим фактором при оценке фона в низкофоновых экспериментах, таких как эксперименты по поиску двойного бета-распада, поиск темной материи и т. д. Одним из возможных источников тепловых нейтронов является естественный распад радионуклидов, содержащихся в гнейсе (порода стен подземной камеры).

Для исследования вариаций потока тепловых нейтронов в подземной лаборатории Баксанской нейтринной обсерватории НЛГЗ-4900, используется установка, состоящая из четырех детекторов тепловых нейтронов. Каждый детектор представляет собой бак в форме параллелипипеда (70*70*30см), просматриваемого через окно фотоумножителем ФЭУ-49Б. На дне бака уложен тонкий сцинтиллятор толщиной 0,7 мм и площадью 0,36 м². Сцинтиллятор представляет собой сплав двух компонент ZnS(Ag) и ⁶LiF в соотношении 1/3, при этом, ZnS(Ag) служит сцинтиллятором, а ⁶Li – является изотопом, на котором происходит захват нейтрона:

${}^6\text{Li} + n \rightarrow {}^3\text{H} + \alpha$. ($Q = 4,79$ МэВ, $E_\alpha = 2051$ кэВ, $E_n = 2735$ кэВ, $\sigma = 945$ барн при 300 К).

Для отслеживания изменений условий окружающей среды, внутри бокса, где расположены сцинтилляционные детекторы, находится регистрирующая аппаратура для записи температуры, влажности и давления атмосферного воздуха.

В 2024 году продолжились углубленные исследования данных, полученных за одиннадцатилетний период измерений вариаций фона тепловых нейтронов с использованием сцинтиллятора [$\text{ZnS(Ag)} + {}^6\text{LiF}$]. Также проводились измерения влажности воздуха в камере и анализ корреляции её изменений с темпом счёта нейтронных счётчиков. На рисунке 13.1 представлен суммарный график темпа счета четырех детекторов за 2012-2023 годы, где чёрной линией обозначены график темпа счета нейтронов за сутки, а красной – вариации влажности воздуха. Видно, что годовые вариации как суточного темпа счёта нейтронов, так и влажности воздуха, существуют, но их максимумы не совпадают, что можно связать с влиянием вентиляции подземных объектов БНО ИЯИ РАН.

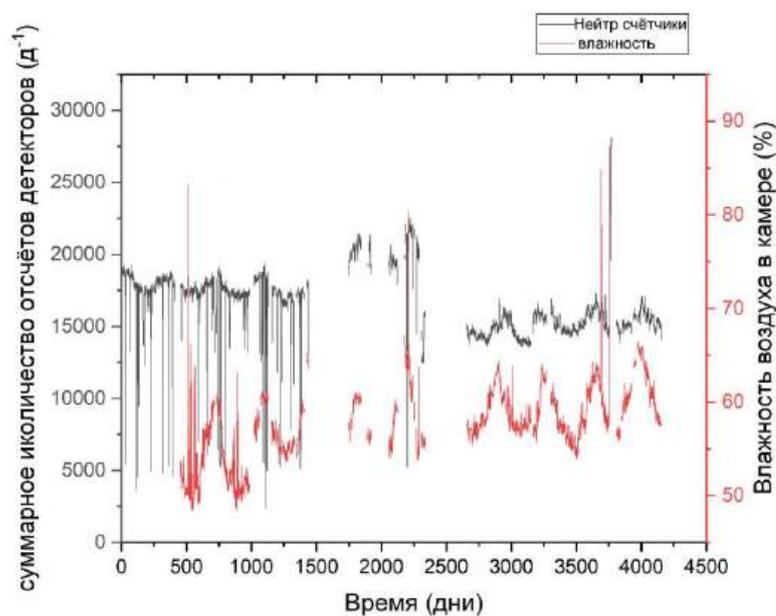


Рисунок 13.1 – Суммарный график темпа счета четырех детекторов за 2012-2023 годы (черная кривая), красная кривая – вариации влажности воздуха

Предварительные результаты анализа данных за 11-летний период показывают, что связь между темпом регистрации тепловых нейтронов, температурой и давлением воздуха, в условиях камеры НЛГЗ-4900, не обнаружена. Однако существует определенная зависимость между уровнем влажности воздуха и темпом регистрации нейтронов. Это можно объяснить тем, что влажность воздуха зависит от количества воды, попадающей в камеру. Летом, когда таяние ледника на вершине горы над камерой НЛЗГ-4900 наиболее активно, количество воды, попадающей в камеру, увеличивается. Вода, как замедлитель, предположительно накапливается в полостях скальных пород, что приводит к увеличению количества замедленных нейтронов. Зимой, когда таяние ледника практически прекращается, количество воды, попадающей в камеру из трещин, уменьшается, что снижает темп регистрации нейтронов. Эти сезонные изменения могут быть одной из причин годовых вариаций темпа счёта нейтронов и влажности воздуха в камере. Таким образом, результаты исследований подчеркивают важность учета климатических факторов при проведении измерений и анализе данных, связанных с вариациями фона тепловых нейтронов.

Параллельно рассматривается задача о возможной регистрации экзотических гипотетических частиц таких как, элементарные чёрные дыры (максимоны), которые могут пролетать через вертикально установленные детекторы, входящие в состав экспериментальной установки. Например, над третьим детектором находится первый, а над четвертым – второй. Время пролёта фотона между первым и третьим сцинтилляторами

составляет $2,4 \cdot 10^{-9}$ с, а между вторым и четвёртым – $2,5 \cdot 10^{-9}$ с. Предполагается, что данные ультрарелятивистские частицы будут проходить через сборку детекторов практически вертикально. Из-за чрезвычайно малого времени пролёта между сцинтилляторами должны фиксироваться одновременные события на детекторах 1-3 или 2-4. В настоящее время разрабатывается алгоритм отбора событий-кандидатов, которые могут соответствовать сигналам от релятивистских частиц.

14. Тестовый низкофоновый сцинтилляционный детектор для контроля содержания радона в воздухе

14.1. Описание монитора радона с низкофоновым сцинтилляционным детектором

Вариации содержания радона в воздухе лабораторного помещения связаны, в первую очередь, с процессами выхода радона из грунта и процессом перемешивания с исходно чистым, но обычно уже загрязнённым атмосферным воздухом. Для изучения особенностей процесса выхода радона из грунта требуется изолировать газящую поверхность и некоторый рабочий, тестовый, объём воздуха от окружающего свободного воздуха и обеспечить условия свободного выхода радона из грунта именно в этот объём.

Обеспечение такого режима предусмотрено в конструкции новой низкофоновой установки, схематический разрез которой приведён на рисунке 14.1.

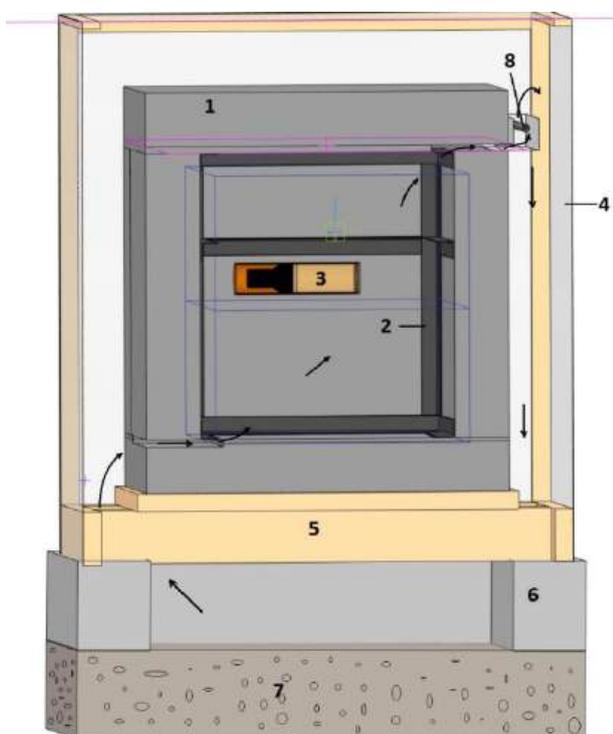


Рисунок 14.1 – Схематический разрез наземной низкофоновой установки со сцинтилляционным детектором для контроля скорости выхода Rn-222 из грунта. 1.

Свинцовая защита; 2. Стальной каркас; 3. Детектор; 4. Полиэтиленовая пленка; 5. Деревянный помост с каркасом для изолирующего шатра; 6. Бетонный пол; 7. Грунт; 8. Трубка с нагревательным элементом внутри. Стрелками показан маршрут перемещения воздуха в полостях установки

Основным узлом установки является низкофоновая защита (1) с рабочей полостью $67,5 \times 70 \times 75$ см³ и объёмом ~355 л. Стенки защиты толщиной 15 см изготовлены из свинца вокруг стального каркаса (2). В левом нижнем и правом верхнем (по рисунку) углах защиты в вертикальных стенках изготовлены сквозные горизонтальные щели. В центре полости

горизонтально подвешен сцинтилляционный детектор (3) на основе кристалла NaI(Tl) с размерим 80*160 мм. Защита накрыта воздухонепроницаемым шатром из полиэтиленовой плёнки (4), укреплённой на деревянном каркасе с помостом (5). Под установкой в бетонном полу (6) сделано углубление размерами 100*100*10 см до грунта (7). Внутри шатра обеспечена непрерывная вентиляция рабочей полости потоком воздуха, обогащённого радоном, выходящим из грунта. Для этого на наружной стороне верхней щели установлен маломощный нагреватель на основе светодиодной гирлянды (8). Щели между бетоном и полиэтиленовой плёнкой промазаны герметиком.

14.2. Измерение содержания радона в воздухе сцинтилляционным детектором

Установка расположена в цокольном помещении наземного лабораторного корпуса БНО ИЯИ РАН. Сам корпус построен на дне Баксанского ущелья в ~50 м от реки Баксан. Грунт является осадочной породой: песок с камнями. Предварительные измерения начаты 18.04.2024. На рисунке 14.2 приведён спектр гамма-фона детектора, накопленный за 817 час, и приведённый к одному часу. Средняя скорость счёта в интервале 520-3050 кэВ составляет $4,9 \text{ с}^{-1}$. Собственный фон детектора, оценённый по результатам измерений в подземной низкофоновой установке с защитой 15 см Pb+10 см Cu составляет $\sim 1 \text{ с}^{-1}$. При сравнении данных наземных измерений следует учесть, что фон детектора, может быть, в ~ 4 раза выше за счёт вклада импульсов от космических лучей. Форма спектра соответствует предположению, что источник равномерно распределён по объёму воздуха, как и ожидается для ^{214}Bi , являющегося дочерним продуктом распада ^{222}Rn [8].

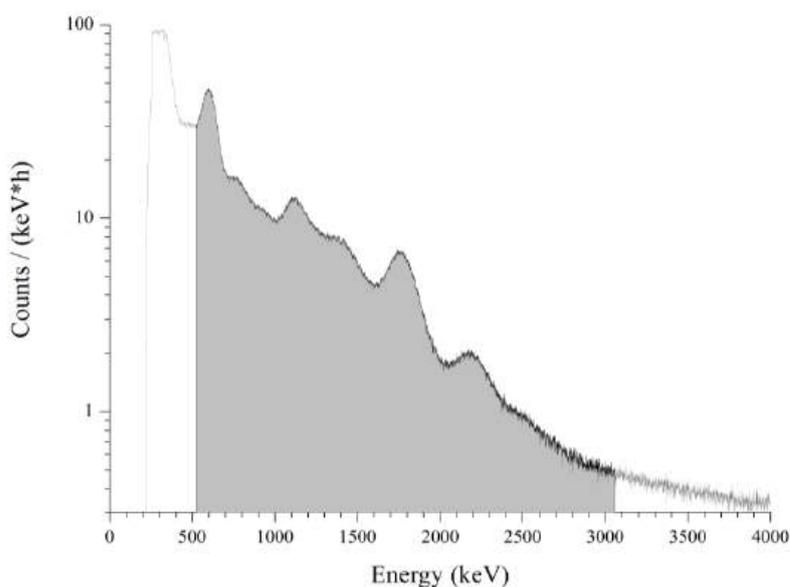


Рисунок 14.2 – Спектр фона сцинтилляционного детектора с кристаллом NaI(Tl) 80*160 мм, в полости 67,5*70*75 см³ защиты из свинца толщиной 15 см в полуподвале лаб. корпуса

Для контроля содержания радона в воздухе внутри шатра импульсы от сцинтилляционного детектора регистрируются цифровым осциллографом ЛА-н10-12РСІ и в режиме «online» обрабатываются. В память компьютера записывается амплитуда импульса и время его появления. Для построения зависимости скорости счёта от времени импульсы с энергией выше 520 кэВ, накопленные за заданный интервал, суммируются. Полученная величина является отдельной точкой при построении графика. На рисунке 14.3 представлена зависимость от времени последовательного ряда таких значений, накопленных за 1 час в период 18.07. - 27.11.2024 (133 дня). Из рисунка видно, что на протяжении первых ~1500 часов в данных отсутствуют суточные вариации.

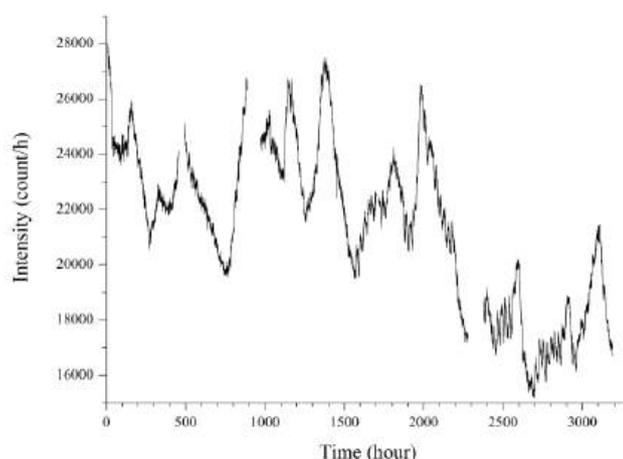


Рисунок 14.3 – Зависимость от времени скорости счёта низкофонового сцинтилляционного детектора с кристаллом NaI(Tl) 80*160 мм, в полости 67,5*70*75 см³ защиты из свинца толщиной 15 см в полуподвале лаб. корпуса в период 17 июля – 27 ноября 2024 года

Это свидетельствует о достаточно высоком качестве герметизации шатра, поскольку в воздухе помещения с установкой суточные вариации должны присутствовать. Наблюдаемые долговременные вариации с периодом ~2 недели могут быть связаны с температурой поверхности шатра (температура в помещении), влажностью воздуха внутри шатра или вариациями скорости выхода радона из грунта тестового участка. Для однозначного ответа пока не хватает данных об этих параметрах. На графике наблюдается нарастание амплитуды суточных вариаций скорости счёта с течением времени, что может свидетельствовать о нарушении герметизации места установки шатра на бетоне из-за температурных деформаций пола с наступлением холодного времени года, поскольку помещение не отапливаемое. Одновременно наблюдается снижение на ~25% средней скорости счёта, что также может свидетельствовать о нарушении герметизации шатра, поскольку содержание радона в воздухе помещения должно быть ниже, чем в шатре [8].

Для сравнения на рисунке 14.4 приведена аналогичная зависимость, полученная с этим же детектором в полости $160*160*50 \text{ см}^3$ свинцовой защиты с толщиной стенок 10-13 см в подземной низкофоновой лаборатории НИКА за период 12 апреля – 27 ноября 2023 года.

Полость продувалась воздухом, ответвлённым из проходящего мимо лаборатории по штольне «Главная» потока свежего воздуха, проветривающего подземный комплекс [49]. При сравнении следует обратить внимание на то, что на рисунке 13.4 скорость счёта нормирована на 4 часа. С учётом этого из сравнения скоростей счёта можно оценить, что свежий воздух из подземной штольни содержит в ~ 2 раза меньше радона. При сравнении не учитывается возможная разница в эффективности регистрации γ -квантов от распада ^{214}Bi из-за различия объёмов рабочих полостей и влияния фона γ -квантов из-за различия в толщине свинцовых защит, а также фона космических лучей. Поэтому результаты сравнения носят качественный, демонстрационный характер. Точная интерпретация данных будет проведена после измерения содержания радона в воздухе внутри шатра с помощью ионной камеры параллельно с измерениями на сцинтилляционном детекторе. В целом проверенная методика регистрации в режиме мониторинга γ -излучения от распада ^{214}Bi , являющегося дочерним продуктом распада ^{222}Rn , представляется перспективной для создания поста автоматического контроля содержания радона в воздухе. Такой пост может быть весьма полезен для предупреждения о возникновении внутренних напряжений в коре Земли, приводящих к интенсификации выхода радона из грунта, в местах проживания людей, где возможны землетрясения [50].

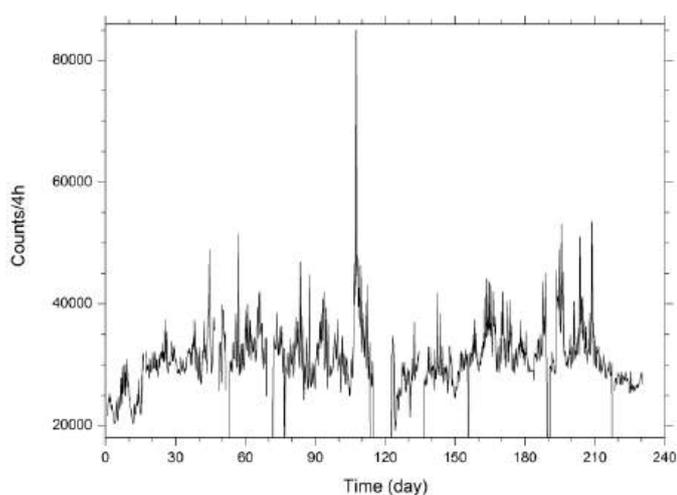


Рисунок 14.4 – Зависимость от времени скорости счёта низкофонового сцинтилляционного детектора с кристаллом $\text{NaI(Tl)} 80*160 \text{ мм}$, в полости $160*160*50 \text{ см}^3$ свинцовой защиты с толщиной стенок 10-13 см в подземной низкофоновой лаборатории НИКА за период 12 апреля – 27 ноября 2023 года

15. Разработка программы реконструкции событий наземной решетки эксперимента Telescope Array

Для реконструкции событий эксперимента Telescope Array использована следующая информация с каждой из сработавших станций наземной решетки:

- информация о времени прихода первой частицы на данную станцию;
- информация об интегральном отклике данной станции;
- информацию о том работает ли фотоэлектронный умножитель и считывающая электроника станции в режиме насыщения;
- временная развертка сигнала на станции.

Информация из последнего пункта используется для восстановления параметров каждой станции и параметров ШАЛ, чувствительных к типу первичной частицы.

Для восстановления направления прихода, положения оси ШАЛ и энергии первичной частицы используется метод оптимизации Нелдера-Мида, не требующий вычисления градиента оптимизируемой функции. Восстановление энергии осуществляется не напрямую, а в два шага. На первом шаге вычисляется плотность сцинтилляционного сигнала на фиксированном расстоянии от оси ШАЛ – 800 м. На втором шаге энергия вычисляется как функция от полученной плотности и зенитного угла.

На основе построенного алгоритма разработана программа для ЭВМ, позволяющая восстанавливать информацию о первичной частице по данным наземной решетки детекторов Обсерватории Telescope Array. Уникальной особенностью программы является то, что она позволяет одновременно с реконструкцией направления прихода первичной частицы и ее энергии, оценивать ряд параметров, чувствительных к типу частицы и ее массе. Среди таких параметров, отношение интегрального сигнала к интенсивности в пике (area-over-peak) и параметр S_b для нескольких значений b [51]. Кроме того, вычисляется число пиков на временной развертке сигнала и параметр асимметрии сигналов верхнего и нижнего слоев станции. Для ряда параметров, таких как число пиков, параметр асимметрии, area-over-peak и других впервые производится вычисление как значений, характеризующих событие в целом, так и величин для каждой сработавшей станции. Указанный расширенный набор величин удобен с точки зрения применения реконструкции для построения классификатора типа первичной частицы на основе машинного обучения.

16. Определение возможного места ADS в атомной энергетике в сравнении с быстрыми реакторами и гибридными термоядерными реакторами и трансмутация минорных актиноидов. Разработка каскадной подкритической сборки, с разделительной системой, обеспечивающей одностороннюю связь между двумя ее составляющими, которая может быть использована в энергетических ADS в условиях долговременной работы

К глобальным проблемам современной ядерной энергетике относятся: накопление радиоактивных долгоживущих продуктов ядерных реакций, прежде всего минорных актиноидов - МА, их переработка и утилизация, потенциальный риск возникновения аварий, в том числе связанных с потерей управления цепной ядерной реакции, замыкание ядерного топливного цикла, развитие ядерной энергетике на основе уран-ториевого цикла.

Существуют и рассматриваются несколько направлений для решения этих проблем с использованием: реакторов на быстрых нейтронах (БР), гибридных термоядерных реакторов, ускорительно-управляемых систем (ADS) [1].

Целями исследования является определение возможного места ADS в структуре атомной энергетике, сравнительный анализ трансмутации минорных актиноидов в ADS, быстрых реакторах и гибридных термоядерных реакторах, основные преимущества ADS. Исследование по снижению мощности ускорителя (каскадная ADS) и сокращению расходов на собственные нужды. Оценка порогового коэффициента умножения ADS, выше которого ADS становится рентабельной с точки зрения производства энергии. Схема исследовательского стенда ADS на основе сильноточного ускорителя ИЯИ РАН с учетом каскадного принципа и с использованием существующей инфраструктуры нейтронного комплекса и сильноточного ускорителя ИЯИ РАН.

Показано, что по сравнению с быстрыми реакторами, в которых концентрация МА в топливе ограничена 5-9% [1]-[2], возможно создание ADS с уровнем загрузки МА, превышающим равновесный уровень, что обеспечивает их эффективное выгорание при сохранении системы в подкритическом состоянии. При этом в blankets ADS возможно расширенное воспроизводство топлива, пригодного для использования в ядерных реакторах. Гибридные термоядерные реакторы, в сравнении с ADS, нарабатывают аномально высокие значения изотопов ^{238}Pu или ^{232}U , что значительно усложняет и удорожает процесс обращения с ядерным топливом. На примере ADS с пучком мощностью 1 МВт и энергией протонов 1 ГэВ сделана оценка по выгоранию МА, прежде всего изотопов америция и кюрия в активной зоне и наработке изотопов плутония в зоне воспроизводства в зависимости от коэффициента умножения – М. Показано, что для ADS с указанными

параметрами пучка при коэффициенте умножения $M \sim 45$ возможно выгорание изотопов Am и Cm, ~ 29 кг в год, что соответствует годовой наработке этих изотопов в одном реакторе ВВЭР-1000. При этом для $M \geq 20$ энергетический баланс может быть положительным с учетом электроэнергии, произведенной на ADS и потенциальной энергии деления в наработанных делящихся изотопах. Для выгорания изотопов Am и Cm от 10 блоков ВВЭР-1000, потребуется ускоритель мощностью ~ 10 МВт. Эта мощность может быть сокращена примерно до 2,5 МВт в случае использования двузонной каскадной схемы [3].

Один из главных недостатков ADS – высокая стоимость первичных нейтронов, обусловленная необходимостью иметь ускоритель с мощным пучком (несколько МВт) и большими затратами электроэнергии на собственные нужды, потребляемой ускорительными комплексами (десятки МВт). Для частичной компенсации этого недостатка может быть использовано сочетание ГЭС, как эффективного накопителя, конденсатора и преобразователя солнечной энергии в электрическую практически с нулевой топливной составляющей в структуре цены электроэнергии, способностью быстро изменять мощность (от нуля до полной – от 30 секунд до 2 минут) и ADS, как промежуточного умножителя этой солнечной энергии, т.е. производителя делящихся материалов для АЭС, собственной выработки электроэнергии с использованием только ОЯТ. ADS можно рассматривать как безопасный «зеленой» умножитель и преобразователь солнечной энергии, работающей только на топливе, выделенном из ОЯТ.

Продолжены работы по обоснованию схемы исследовательского стенда ADS с учетом возможного каскадного принципа [1-3]. Расчеты проводились с использованием программного комплекса MCNPX и аналитических методик.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

План работ на 2024 год выполнен полностью. Получены значимые научные результаты.

1. Задача «Улучшение параметров генератора рубидия-82».

Исследованы механизмы химических процессов при приготовлении сорбента из гидратированного диоксида олова (ГДО) по разработанной в ИЯИ РАН методике, а также при клиническом применении генератора рубидия-82, т.е. при длительном динамическом контакте сорбента с изотоническим раствором (0,9% NaCl или 0,15 М NaCl). Задача выполнена полностью.

2. Задача «Разработка циркулирующего $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ генератора для прямого синтеза меченых соединений».

Исследована кинетика мечения висмутом конъюгата DOTA-Substance P в отсутствие и в присутствии сорбента сефадекс в статических и динамических условиях. Предложена методика контроля качества полученного препарата методами тонкослойной хроматографии и спектрофотометрически. В модельных экспериментах показана принципиальная возможность получения готового меченного висмутом биоконъюгата непосредственно на колонке генераторной системы. Задача выполнена полностью.

3. Задача «Изучение экстракционных и хроматографических методов разделения Ti(IV) и Sc(III) для разработки генераторных схем получения ^{44}Sc ».

Получены коэффициенты распределения для жидкость-жидкостной экстракции Ti(IV) и Sc(III) в ультрамикроразбавлениях из растворов соляной и азотной кислот различной концентрации растворами Аликват 336 (хлорид метилтриоктиламмония), Д2ЭГФК (ди(2-этилгексил)фосфорная кислота), ТБФ (трибутилфосфат) и ТОФО (три-н-октилфосфиноксид), а также коэффициенты распределения Ti(IV) и Sc(III) при сорбции на экстракционно-хроматографических сорбентах TEVA Resin и LN Resin. Задача выполнена полностью.

4. Задача «Разработка новой высокопродуктивной ториевой мишени для получения актиния-225 на пучке протонов линейного ускорителя ИЯИ РАН».

Разработан метод изготовления мишени металлического тория в ниобиевой оболочке, которая эффективна для получения актиния-225 и ряда других медицинских радионуклидов. Для этого в процессе изготовления мишени проводят диффузионную сварку при температуре 1250-1430 °С при давлении на площадь мишени 30-150 кГ/см², причем в ниобиевом корпусе мишени предварительно делают полую канавку для компенсации большего расширения тория во время сварки. Задача выполнена полностью.

5. Задача «Получение натрия-22 для изготовления источников радиоактивного излучения».

Разработана новая мишень для эффективной наработки натрия-22 на пучке протонов с энергий до 160 МэВ линейного ускорителя ИЯИ РАН. Это позволит в будущем обеспечить научные и промышленные потребности России в данном ценном радионуклиде. Осуществлена поставка пробной партии натрия-22 в АО «Ритверц» для изготовления источников. Задача выполнена полностью.

6. Задача «Дозиметрия высокоинтенсивного протонного излучения».

Проведение радиобиологических экспериментов с пучками протонов в режимах ФЛЭШ-терапии потребовало на начальных этапах настройки лучевой установки использовать ионизационные камеры и конвенциональные режимы облучения. Это связано с тем, что штатными детекторами автоматизированного водного фантома МРЗ-Р являются именно ионизационные камеры, а этот водный фантом позволяет точно контролировать локальную дозу, получаемую биологическими объектами в выбранной точке кривой Брэгга. Однако использование пленочных детекторов и черенковских мониторов позволило использовать протонную лучевую установку и для проведения радиобиологических экспериментов в режимах ФЛЭШ-терапии. Пленочные детекторы существенно недооценивают поглощенную дозу в области дистальной части пика Брэгга, где велика поглощенная доза и максимальна биологическая эффективность протонов. Отклонение результатов измерения доз с пленочными детекторами качественно воспроизводится локальным градиентом ЛПЭ, который можно оценить расчетным путем до проведения облучения. Получено хорошее согласие измерений черенковского монитора на протонном пучке с показаниями индукционного датчика тока в режимах облучения с рекордно высокой для протонов мощностью дозы. Результаты работы подтвердили перспективность применения нового монитора в протонной флэш-терапии. В дальнейшем, после детального исследования свойств черенковских мониторов и пленочных детекторов и зависимости их показаний от всех существенных параметров пучков, может появиться возможность настраивать лучевую установку и контролировать облучение биологических мишеней в режимах ФЛЭШ-терапии без предварительного использования конвенционального режима облучения.

7. Задача «Подготовка и планирование равномерного облучения биологических объектов в ходе радиобиологических исследований».

В рамках данной задачи разработана методология проведения эксперимента, включающая в себя методы фиксации и расположения образцов в протонном пучке. Также разработана и протестирована математическая модель расчета транспорта протонных

пучков в лабораторной установке, основанная на методе Монте-Карло и использующая библиотеки Geant4. Результаты моделирования проанализированы на предмет возможности применения установки при текущих параметрах формируемого поля распределения дозы для проведения биологических экспериментов. Анализ продемонстрировал однородность поглощенной дозы в образцах в пределах 10%, а также различие в лучевой нагрузке между левыми и правыми образцами в пределах 1.5% по уровню 50% объема мишеней. Полученные результаты указывают на возможность применения установки для проведения радиобиологических исследований с использованием дополнительного дозиметрического контроля. В ходе радиобиологических экспериментов на пучках протонов, включающих измерения дозы с помощью радиохромных пленок EBT-XD, была продемонстрирована высокая степень соответствия экспериментальных данных и результатов, полученных с помощью компьютерной симуляции

8. Задача «Облучение и анализ реакции биологических объектов».

При проведении флуоресцентной микроскопии клеточная гибель анализировалась по трем параметрам: ранний апоптоз (Anx+,PI-), поздний апоптоз (Anx+,PI+) и некроз (Anx+,PI-). По результатам апоптоза и некроза HT-29 было подтверждено преимущество режима SPLASH по сравнению со стандартным FLASH и конвенциональными режимами. Через 24 часа после облучения. Через 24 часа после облучения обнаружена тенденция к повышению уровня позднего апоптоза в интервале доз 8.6-10.5 Гр у опухолевых клеток HT-29, облученных в режимах флэш и сплэш по сравнению с клетками HT-29, облученными в конвенциональном режиме с дозой 13.2 Гр. Также наблюдалось повышенная выживаемость фибробластов в SPLASH и FLASH режимах по сравнению с конвенциональным режимом и высокий уровень позднего апоптоза у нормальных клеток. Зафиксированы изменения в пролиферативной и митохондриальной активности клеток в зависимости от клеточной культуры, подведенной дозы и мощности дозы. Количество синтезирующих ДНК клеток HT-29 к 120 часам существенно уменьшается при всех режимах облучения. Кривые для FLASH - и SPLASH - режимов облучения были практически параллельны. Статистической разницы количества клеток в разные сроки после облучения между FLASH - и SPLASH - режимами при исследованных сравнимых дозах (примерно 8-9 Гр) не наблюдали. При большей дозе для конвенционального режима (примерно 13 Гр) наблюдался и больший угол наклона.

9. Задача «Комплексные испытания радиационно-защитных материалов».

Безопасные испытания материала СИЗ ионизирующим излучением выполнены с учётом опыта контроля качества радиационно-защитных материалов, проводимых с

использованием источников, активность которых соизмерима с активностью фона (см. работу [4]) с перспективой аттестации данного способа и создания испытательной лаборатории.

Имитация радиоактивного загрязнения для оценки дезактивируемости СИЗ выполнена на основе анализа достижений в области военного дела с целью обеспечить предприятия, выпускающие мирную продукцию, безопасным и экономичным способом оценки дезактивируемости материалов. В итоге в ФИПС подана заявка для получения патента на изобретение, с перспективой дальнейшего развития прикладных исследований в данном направлении.

10. Задача «Активационные испытания многокомпонентных материалов».

Разработан новый метод определения состава, концентрации и распределение поглощающей компоненты РЗМ по вторичным спектрам характеристического рентгеновского излучения и дозовому распределению на поверхности материала. Измерены коэффициенты поглощения РЗМ гамма- и бета-излучений от закрытых лабораторных радионуклидных источников с помощью гамма-спектрометрического комплекса СКС-07П-Г41 и радиометра МКС-01Р. Определены элементный и количественный состав поглощающей компоненты РЗМ с помощью рентгеновских спектров поглощающей компоненты материала. Протестированы измерительные узлы испытательного стенда на основе комплекса СКС-07П-Г41 и радиометра МКС-01Р с использованием локальной сети и микрокомпьютеров Raspberry Pi2. Разработанные методы и спектрометрическая и дозиметрическая аппаратура могут быть использованы для исследования функциональных свойств материалов на имеющихся источниках радиоактивного излучения.

11. Задача «Исследование аномального электромагнетизма в углеродных конденсатах».

Сверхпроводящие корреляции в графитовых пленках.

Принципиальная возможность сверхпроводимости при комнатной температуре, а возможно, и при более высоких температурах, вплоть до 650К (см. рисунок 1), предполагает возможность существования смешанной сверхпроводящей фазы, состоящей из движущейся вихревой решетки и одиночных вихрей. Полученный результат объясняется движением вихревой решетки из-за тепловых флуктуаций. Наличие смешанной сверхпроводящей фазы при температурах до 650К позволит использовать графитовую пленку во многих приложениях для снижения тепловыделения, например, при покрытии такой пленкой внутренней поверхности резонаторов протонных и ионных ускорителей. В новой фазе исследований в 2025 г. данные по магнитным потокам в графитовой пленке

во время переключения проводимости будут проверены экспериментальными измерениями.

12. Задача «Разработка перспективных методов детектирования нейтронов и протонов».

Монитор нейтронного потока для реактора ПИК.

В 2024 году проводилась разработка газового радиохимического монитора нейтронного потока для реактора ПИК. Особенность такого монитора состоит в том, что он должен регистрировать рекордный нейтронный поток с плотностью до 10^{15} н/см²/сек в очень небольшом по габаритам экспериментальном канале диаметром 100 мм реактора ПИК. По итогам работы была написана статья “Point-Like Neutron Monitor for the High-Flux Nuclear and Thermonuclear Reactors” и принята к публикации в журнале Journal of Applied Surface Science

13. Задача «Поиск вариаций потока тепловых нейтронов в подземной лаборатории НЛГЗ-4900 в БНО ИЯИ РАН, связанных с солнечными и лунными приливными эффектами, метеорологическими условиями, сейсмической активностью в регионе».

Предварительные результаты обработки данных за 11 летний период показывают, связи между темпом регистрации тепловых нейтронов, температурой и давлением воздуха, в условиях камеры НЛГЗ-4900, не обнаружено. Существует некоторая зависимость между уровнем влажности воздуха и темпом регистрации нейтронов. Что может быть объяснено тем, что влажность воздуха зависит от количества воды, попадающей в камеру. Так летом, когда таяние ледника на вершине горы над камерой НЛЗГ-4900 наиболее интенсивно, количество воды, попадающей в камеру, удваивается. Вода, как модератор предположительно накапливается в полостях скальных пород, из-за чего количество замедленных нейтронов становится больше. Зимой, когда таяние ледника практически прекращается, воды, попадающей в камеру из трещин, становится меньше, от чего темп регистрации нейтронов тоже становится меньше. Это, как следствие, может быть, одним из объяснений годовых вариации темпа счёта нейтронов и влажности воздуха в камере.

Также рассматривается задача о возможной регистрации экзотических гипотетических частиц таких как, элементарные чёрные дыры (максимоны), которые могут пролетать через вертикально установленные детекторы, входящие в состав экспериментальной установки. Предполагается, что данные ультрарелятивистские частицы будут проходить через сборку детекторов по нормали. Из-за чрезвычайно малого времени пролёта между сцинтилляторами должны фиксироваться одновременные события на

детекторах 1-3 или 2-4. В настоящее время разрабатывается алгоритм отбора событий-кандидатов, которые могут соответствовать сигналам от релятивистских частиц.

14. Задача «Тестовый низкофоновый сцинтилляционный детектор для контроля содержания радона в воздухе».

Подтверждена возможность использования наземной низкофоновой установки в составе низкофоновой защиты со свинцовыми стенками толщиной 15 см, с рабочей полостью $67,5 \times 70 \times 75$ см³ (объем ~355 л), в центре которой горизонтально подвешен сцинтилляционный детектор на основе кристалла NaI(Tl) с размерами 80*160 мм, в качестве монитора γ -излучения от распада ²¹⁴Bi, являющегося дочерним продуктом распада ²²²Rn, содержащегося в воздухе рабочей полости. Для абсолютной калибровки чувствительности к радону монитора с γ -детектором будет использован монитор радона с ионной камерой.

В заключении считаем необходимым продолжить работы по совершенствованию конструкции и состава низкофонового монитора радона со сцинтилляционным детектором с целью оптимизации рабочих и стоимостных характеристик устройства, пригодного для использования в качестве автоматизированного поста слежения за выходом подземных газов в потенциально сейсмоопасных местностях. План работ на 2024 год выполнен полностью.

15. Задача «Разработка программы реконструкции событий наземной решетки эксперимента Telescope Array».

Разработан алгоритм реконструкции событий наземной решетки Обсерватории Telescope Array, включающий в себя восстановление параметров ШАЛ, чувствительных к типу первичной частицы на уровне событий и на уровне отдельных станций. Зарегистрирована программа для ЭВМ «Реконструкция событий наземной решетки Обсерватории Telescope Array (nuf. i12c)». Разработанная программа для ЭВМ может быть использована для построения эффективного классификатора, основанного на методах машинного обучения, разделяющего события, вызванные первичными фотонами, нейтрино и адронами.

16. Задача «Определение возможного места ADS в атомной энергетике в сравнении с быстрыми реакторами и гибридными термоядерными реакторами и трансмутация минорных актиноидов. Разработка каскадной подкритической сборки, с разделительной системой, обеспечивающей одностороннюю связь между двумя ее составляющими, которая может быть использована в энергетических ADS в условиях долговременной работы».

Задача выполнена с использованием программных комплексов MCNPX, аналитических и инженерных расчетов. Результаты могут быть использованы для

возможных оценок путей развития ядерной энергетики так и для дальнейшего развития нейтронного комплекса ИЯИ РАН и ADS.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Сочетанные радиационные поражения / Е. Е. Гогин [и др.] // М.: ППО «Известия», 2000. – 240 с.
2. Завод специального оборудования АО «ПТС». – URL: <https://pto-pts.ru>.
3. ГОСТ Р 53264-2019. Техника пожарная. Одежда пожарного специальная защитная. Общие технические требования. Методы испытаний. – М.: Стандартинформ, 2019. – 42 с.
4. RU 53113 U1, 2006.
5. Skorkin V.M. Study of composite material for individual radiation-protective suit // XVIII Конференция по космической биологии и авиакосмической медицине с международным участием «Земля – Орбита – Дальний космос». Тезисы докладов. – Москва, 2023. – С. 435-436.
6. Связь вариации потока тепловых нейтронов из земной коры с лунными периодами и сейсмической активностью/ Алексеенко В. В. [и др.] // Физика земли. – 2009. – N 8. – С. 91 - 100.
7. High-resolution ion pulse ionization chamber with air filling for the ^{222}Rn decays detection/ Gavrilyuk Yu.M. [et al.] // Nucl. Instrum. And Meth. – 2015. – Vol. A801. – P. 27-33.
8. ^{222}Rn content variations at ground and underground conditions/ Eteзов R.A. [et al.] [Электронный ресурс] // arXiv.org. – 2021. – URL: <https://arxiv.org/abs/2110.15289> (дата обращения: 03.12.2024).
9. Титченко Н.А. Исследование анионообменных смол для применения в генераторной системе $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ // «МедХим-Россия», материалы конференции. Издательство Волгоградского государственного медицинского университета, 2021. С. 279–279.
10. Post-elution processing of $^{44}\text{Ti}/^{44}\text{Sc}$ generator-derived ^{44}Sc for clinical application / Pruszyński M. [et al.] // Applied Radiation and Isotopes. – 2010. – Vol. 68, №. 9. – P. 1636-1641.
11. $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ generator for direct synthesis of ^{213}Bi -labeled bioconjugates / Ermolaev S.V. [et al.] // Nuclear Medicine and Biology. – 2024. – Vol. 140-141 – Paper № 108975.
12. Патент РФ RU 2725414 C1 2019. Способ получения актиния-225. // Ермолаев С.В. [и др.].
13. Заявка на патент РФ № RU 2024120592А, 18.07.2024. Способ изготовления мишени из металлического тория для получения радионуклидов // Жуйков Б.Л. [и др.].
14. Патент РФ RU 2373589 C1 2008. Способ получения актиния-225 и изотопов радия и мишень для его осуществления (варианты). // Жуйков Б.Л. [и др.].

15. Лякишев Н.П. Диаграммы состояния двойных металлических систем: Справочник в 3 т. - М.: Машиностроение, 1997. – Т. 2. –1024 с.
16. Жуйков Б.Л., Ермолаев С.В. Радиоизотопные исследования и разработки на линейном ускорителе ИЯИ РАН// Успехи физических наук. – 2021. – Т. 191(12). – С. 1387-1400.
17. TOPAS: an innovative proton Monte Carlo platform for research and clinical applications. / J. Perl [et al.] // Med Phys. – 2012. – Nov;39(11):6818-37. [doi: 10.1118/1.4758060](https://doi.org/10.1118/1.4758060).
18. Evaluation of ion chamber response for applications in electron FLASH radiotherapy / K. Liu [et al.] // Medical Physics (in press). <https://doi.org/10.1002/mp.16726>.
19. Report of AAPM Task Group 235 Radiochromic Film Dosimetry: An Update to TG-55 / A. Niroomand-Rad [et al.] // Medical Physics. – 2020. – Vol., Is.12. – P. 5986-6025. <https://doi.org/10.1002/mp.14497>.
20. A linear relationship for the LET-dependence of Gafchromic EBT3 film in spot-scanning proton therapy / S. E. Anderson [et al.] // Phys. Med. Biol. – 2019. – 64. – 055015. <https://doi.org/10.1088/1361-6560/ab0114>.
21. Under-response correction for EBT3 films in the presence of proton spread out Bragg peaks / F.Fiorini [et al.] // Eur.Journ.Med.Phys. – 2014. – 30(4). – P. 454-61,2014. <https://doi.org/10.1016/j.ejmp.2013.12.006>.
22. Proton minibeam radiation therapy: Experimental dosimetry evaluation / C. Peucell [et al.] // Med Phys. – 2015. – V. 42(12). – P. 7108-13. <https://doi.org/10.1118/1.4935868>.
23. Akulinichev S.V., Gavrilov Yu.K., Djilkibaev R.M. Calibration of the Proton Beam Cherenkov Monitor // Instruments and Experimental Techniques. – 2023. – Vol. 66, No. 4. – P. 365-368. <https://doi.org/10.1134/S0020441223020124>.
24. Cirrone G.A.P., Cuttone G., Mazzaglia S.E. // Progress in nuclear science and technology. – 2011. – V. 2. – P. 207-212.
25. RU 2800807 C1, 2023.
26. Обеспечение безопасного контроля радиационно-защитных свойств спецодежды пожарных / М. Н. Лифанов [и др.] // Безопасность труда в промышленности. – 2024. – № 2. – С. 58-63.
27. Кресин В.З., Овчинников Ю. Н. Гигантское усиление сверхпроводящего спаривания в металлических наноклстерах: сильное увеличение температуры перехода и возможность сверхпроводимости при комнатной температуре // Успехи физических наук. – 2008. – Том.178, N5. – С. 449-458.
28. Kresin V. Z, Ovchinnikov Y. N. Shell structure and strengthening of superconducting pair correlation in nanoclusters // Physical Review B – 2006. – Vol.74, N 2. – P 024514 - 024525.

29. Югай К.Н. Топологическая сверхпроводимость наноструктур // Вестник Омского университета. – 2013. – Том. 2, N 68. – С. 104-107.
30. Lebedev S.G., Topalov S. V. Observation of Weak Superconductivity in Carbon Films // Bulletin of the Lebedev Physics Institute. – 1994. – N. 12. – P. 14-20.
31. Lebedev S.G. Field-effect switching in nano-graphite films // Journal of Physics and Chemistry of Solids. – 2014. – V. 75, N. 9. – P. 1029-1032.
32. Lebedev S.G. Particle irradiation for verification of superconducting-like behavior in carbon arc films // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2004. – Vol.A521. – P. 22-26.
33. Lebedev S.G. Evidence of Josephson-like behavior of thin granular carbon films // International Review of Physics. – 2008. – Vol.2. – P. 312-328.
34. Lebedev S.G. Unconventional Electromagnetics in Carbonaceous Materials // New York: Nova Science Publishers. – 2010. –107 p.
35. Lebedev S.G. Traces of superconducting correlations in nanographite films // Journal of Materials Science: Materials in Electronics. – 2020. – Vol. 31, N 23. – P. 20883-20898.
36. Observation of rf-induced dc voltages in sputtered binary superconducting films / Sadate-Akhavi H [et al] // Solid state communications. – 1984. – Vol. 50, N. 11. – P. 975-978.
37. Munger R., Smith. H.J.T. High-temperature reverse ac Josephson Effect in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ // Physical Review B. – 1991. – Vol. 44, N. 1. – P. 242-250.
38. Wang C.Z., Ho K. M., Chan C. T. Tight-binding molecular-dynamics study of amorphous carbon // Physical review letters. – 1993. – Vol. 70, N. 5. – P. 611-625.
39. Giant flux creep through surface barriers and the irreversibility line in high-temperature superconductors / Burlachkov L. [et al] // Physical Review. – 1994. – Vol. 50, N 22. – P. 16770- 6775.
40. Hu Chia-Ren. Numerical Constants for Isolated Vortices in Superconductors // Phys. Rev. B. – 1972. – Vol. 6. – P. 1756–1760.
41. Maurer S.M. Vortex pinning by cylindrical defects in type-II superconductors: Numerical solutions to the Ginzburg-Landau equations // Phys. Rev. B. – 1996. – Vol. 54. – P. 15372–15379.
42. Lebedev S.G., Yants V. E., Lebedev A. S. Correlations between switching of conductivity and optical radiation observed in thin graphite-like films // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 2008. – Vol. 590, N. 1-3. – P. 227-233.

43. Mints R.G., Rakhmanov A.L. Critical state stability in type-II superconductors and superconducting-normal-metal composites// *Reviews of Modern Physics*. – 1981. – Vol. 53, N 3. – P. 551-582.
44. Laviano F. Vortex avalanches in superconductors visualized by magneto-optical imaging // *Vortices and Nanostructured Superconductors* – 2017. – P. 133-157.
45. Gorkov L.P., Kopnin N.B. The motion of vortices and the electrical resistance of superconductors of the second kind in a magnetic field // *Uspekhi fizicheskikh nauk*. – 1975. – Vol. 116, N. 7. – P. 413-448.
46. Abrikosov A.A. *Fundamentals of Metal Theory*. – Counter Dover. – 2017. –340 p.
47. Lebedev S.G. Josephson Effect in nanographite films // *Journal of Technical Physics*. – 2022. – Vol. 92, N. 12. – P. 1867-1869.
48. Lebedev S.G. Point-Like Neutron Monitor for the High-Flux Nuclear and Thermonuclear Reactors // *J. Nucl. Sci. Tech*. – 2023. – Vol. 2, N 101. – P.1-8.
49. Гаврилюк Ю.М. [и др.]. Создание воздушной ионной камеры высокого давления для измерения содержания ^{222}Rn в подземных условиях// Отчёт ЛНФИ БНО ИЯИ РАН. – 2023.
50. «Землетрясение в Л'Акуиле» [Электронный ресурс] // Википедия. – 2009. – URL:
https://ru.wikipedia.org/wiki/%D0%97%D0%B5%D0%BC%D0%BB%D0%B5%D1%82%D1%80%D1%8F%D1%81%D0%B5%D0%BD%D0%B8%D0%B5_%D0%B2_%D0%9B%E2%80%99%D0%90%D0%BA%D1%83%D0%B8%D0%BB%D0%B5 (2009) (2009) (дата обращения: 03.12.2024).
51. A new composition-sensitive parameter for Ultra-High Energy Cosmic Rays / G. Ros [et al.] // *Astropart.Phys*. – 2011. – Vol. 35. – P. 140-151.
52. Колесов В.Ф. Электроядерные установки и проблемы ядерной энергетики, РФЯЦ ВНИИЭФ, Саров, 2013 г. <http://book.sarov.ru/wp-content/uploads/2018/11/Works-RFNC-VNIEF-v22-1-16.pdf>
53. Колесов В.Ф., Гужовский Б.Я. Повышение эффективности электроядерного трансмутационного устройства за счет многосекционной структуры blankets. *Атомная энергия* - 1994. -Том.76, вып. 1.- С. 71-78.
54. Proposal of the ADS Research Stand Based on the Linac of the Institute for Nuclear Research of the Russian Academy of Sciences. / S.F. Sidorkin [et al.] // *Thorium Energy for the World. Proceedings of the ThEC13 Conference, CERN: Globe of Science and Innovation, Geneva, Switzerland, October 27-31, 2013* P. 311-326 <http://www.springer.com/in/book/9783319265407>

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Список публикаций исполнителей отчета за 2024 г.

А.1 Статьи в журналах из «Белого списка» на 2023 (протокол заседания Межведомственной рабочей группы по формированию и актуализации «Белого списка» научных журналов № ДС/17-пр от 15.05.2023 г.)

1 Production of ^{225}Ac for medical application from ^{232}Th -metallic targets in Nb-shells irradiated with middle-energy protons / Ermolaev S.V. [et al.] // *New Journal of Chemistry* – 2024. – Vol. 48(18). – P. 8222-8232. – <https://doi.org/10.1039/D3NJ05778J>.

2 $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ generator for direct synthesis of ^{213}Bi -labeled bioconjugates / Ermolaev S.V. [et al.] // *Nuclear Medicine and Biology*. – 2024. – Vol. 140-141 – Paper № 108975. – <https://doi.org/10.1016/j.nucmedbio.2024.108975>.

3 Gas-chemical approach to $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ radionuclide generator for medical application / Zobnin V.A. [et al.] // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2025. – Vol. 215 – Paper № 111581. – <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2024.111581>.

4 Акулиничев С.В., Гаврилов Ю.К., Джилкибаев Р.М. Позиционно-чувствительный черенковский монитор протонного пучка // *Приборы и техника эксперимента (ПТЭ)*. – 2024 – No.5., <https://iet.ras.ru/2024/5/pub/akulinichev.pdf>

5 Оценка точности дозиметрии протонных пучков плёночными детекторами / Мерзликин Г.В. [и др.] // *Приборы и техника эксперимента (ПТЭ)*. – 2024 – No.5, <https://iet.ras.ru/2024/5/pub/merzlikin.pdf> .

6 Manifestation of the FLASH effect in proton irradiation of embryos / Akulinichev S. V. [et al.] // *International Journal of Radiation Biology (IJRB)*. – 2024. – <https://doi.org/10.1080/09553002.2024.2435338>.

7 Akulinichev S.V., Gavrilov Yu.K., Djilkibaev R.M. Position-Sensitive Cherenkov Monitor of High-Intensity Proton Beams // *Physics of Atomic Nuclei*. – 2024 (в печати).

8 Формирование и дозиметрия протонных пучков для исследования флэш-терапии / Акулиничев С.В. [и др.] // *Медицинская физика*. – 2024. – No.4. (в печати).

9 Akulinichev S.V., Gavrilov Yu.K., Djilkibaev R.M. Cherenkov real-time monitor for proton flash therapy // *Journal of Instrumentation (JINST)*. – 2024. (в печати).

10 Обеспечение безопасного контроля радиационно-защитных свойств спецодежды пожарных / М.Н Лифанов [и др.] // *Безопасность труда в промышленности*. – 2024. – № 2. – С. 58-63. – <https://doi.org/10.24000/0409-2961-2024-2-58-63>.

11 Skorkin V.M., Potashev S.I., Kasparov A.A. Modeling of cluster decay of light nuclei by the interaction of the ${}^9\text{Be}$ nucleus with fast neutrons in an ionization chamber // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. – 2024. – V. 88, No. 8. – P. 1218. – <https://doi.org/10.1134/S1062873824707359>.

12 Лебедев С.Г. О возможности существования сверхпроводящей фазы в нанографитовых пленках// Инноватика и экспертиза. - 2024.- N 1 (37) - С. 98-108.

13 Лебедев С.Г. «Сверхпроводящие корреляции в нанографитовых пленках» // Журнал технической физики. – 2024. -. статья на рецензировании.

14 Lebedev S.G. Hunts for a Superconductive Phase in Nanographite Films//Journal of Superconductivity and Novel Magnetism – 2024. - находится на рецензировании

15 Lebedev S.G. Point-Like Neutron Monitor for the High-Flux Nuclear and Thermonuclear Reactors// Journal of Applied Surface Science. -2024- находится на рецензировании.

A.2 Статьи в журналах и сборниках, материалы конференций, главы в книгах, индексируемые РИНЦ

1. Ermolaev S.V., Zhuikov B.L. Recovery of ${}^{225}\text{Ac}$ from proton-irradiated thorium and development of ${}^{225}\text{Ac}/{}^{213}\text{Bi}$ generator//XXLL Mendeleev congress on general and applied chemistry. Book of abstract. – М.: “Buki Vedi”. – Vol. 5 – 2024. – P. 124.

2. Lapshina E.V., Ermolaev S.V., Vasiliev A.N. Production of ${}^{230}\text{Pa}$ as a source of radionuclides ${}^{230}\text{U}$ and ${}^{226}\text{Th}$ for targeted alpha therapy//XXLL Mendeleev congress on general and applied chemistry. Book of abstract. – М.: “Buki Vedi”. – Vol. 5 – 2024. – P. 189.

3. Development of short-lived alpha-emitter ${}^{226}\text{Th}$ generator for treatment of epithelial and easily accessible tumors / Vasiliev A.N. [et al.] // XXLL Mendeleev congress on general and applied chemistry. Book of abstract. – М.: “Buki Vedi”. – Vol. 5 – 2024. – P. 237.

4. Separation of Ti-44 and Sc-44 by extraction and extraction chromatography methods / Titchenko N.A. [et al.] // XXLL Mendeleev congress on general and applied chemistry. Book of abstract. – М.: “Buki Vedi”. – Vol. 5 – 2024. – P. 233

5. Уровни апоптоза и синтеза ДНК у опухолевых и нормальных клеток человека после флэш-облучения протонами / В.В. Мартынова [и др.] // International Scientific Conference «Innovative Technologies of Nuclear Medicine and Radiation Diagnostics and Therapy» С. 44 // 21-23 октября 2024, ФИАН, Москва.

6. Разработка лучевой установки комплекса протонной терапии ИЯИ РАН / И.А. Яковлев [и др.] // International Scientific Conference «Innovative Technologies of Nuclear Medicine and Radiation Diagnostics and Therapy» С. 48. 21-23 октября 2024, ФИАН, Москва.

7. FLASH-облучение протонами снижает радиационное повреждение эмбрионов *Coturnix japonica* в сравнении с конвенциональным режимом облучения. / Глухов С.И. [и

др.] // Конференция «Актуальные проблемы радиационной биологии. Модификация радиационноиндуцированных эффектов»: Междунар. конф. (Дубна, 16–18 окт. 2024 г.): Матер. конф. – Дубна: ОИЯИ, 2024. – 244 с. ISBN 978-5-9530-0628-6. С. 65–66. 16-18 октября 2024, ОИЯИ, Дубна. http://www1.jinr.ru/Proceedings/LRB_Conference2024.pdf.

8. FLASH-облучение протонами эмбрионов перепела обнаруживает лучшую сохранность тканей и эмбриогенеза по сравнению с конвенциональным / Глухов С.И. [и др.] // Теоретическая и экспериментальная биофизика: Материалы конференции «Теоретическая и экспериментальная биофизика», Пуцзино: Синхробук (Synchrobook™), 2024. – 107 с. ISBN 978-5-91874-913-5. С. 22-24. 19-21 февраля 2024, ИТЭБ РАН, Пуцзино.

9. Akulinichev S. Research of the FLASH effect at the proton accelerator of INR RAS // LXXIV International Conference NUCLEUS-2024 Fundamental problems and applications С. 228. 1-5 июля 2024, ОИЯИ, Дубна.

10. Оценка точности дозиметрии протонов с плёночными детекторами / Г. Мерзликин [и др.] // LXXIV International Conference NUCLEUS-2024 Fundamental problems and applications С. 231. 1-5 июля 2024, ОИЯИ, Дубна.

11. Эксперименты по облучению биологических моделей в протонном пучке / И. Яковлев [и др.] // LXXIV International Conference NUCLEUS-2024 Fundamental problems and applications С. 232. 1-5 июля 2024, ОИЯИ, Дубна.

13. Позиционно-чувствительный черенковский монитор мощных пучков протонов / Ю. Гаврилов [и др.] // LXXIV International Conference NUCLEUS-2024 Fundamental problems and applications С. 233// 1-5 июля 2024, ОИЯИ, Дубна.

14. Анализ клеточной гибели и пролиферативной активности клеточных культур при облучении протонами в режиме ФЛЭШ / В. Мартынова [и др.] // LXXIV International Conference NUCLEUS-2024 Fundamental problems and applications С. 234. 1-5 июля 2024, ОИЯИ, Дубна.

15. Lebedev S.G. Hunts for a Superconductive Phase in Nanographite Films// Report on the 9th International Conference on Superconductivity and Magnetism ICSM2024 27th April-4th May 2024.

16. Lebedev S.G. Possibility of superconductive phase in nanographite films Report on the International Conference on Advanced Functional Materials scheduled on November 18-19, 2024

17. Некоторые особенности ADS и предложение по исследовательскому стенду на основе линейного ускорителя ИЯИ РАН/ С.Ф. Сидоркин [и др.] // 32-я Всероссийская научно-техническая конференция «Нейтронно-физические проблемы атомной энергетики» «Нейтроника-2024» Обнинск, 28 – 31 мая 2024)

А.3 Патенты на изобретения и полезные модели, свидетельства о регистрации программ, баз данных, иные РИД, имеющие официальную регистрацию

1. Заявка на патент РФ № RU 2024120592А, 18.07.2024. Способ изготовления мишени из металлического тория для получения радионуклидов // Жуйков Б.Л. [и др.].
2. RU 2825236 С1, 2024.
3. Заявка на патент РФ № RU 2024120601, 18.07.2024 Способ мониторинга нейтронного потока в высокопоточных ядерных установках // С.Г.Лебедев.
4. Рубцов Г.И. Программа для ЭВМ «Реконструкция событий наземной решетки Обсерватории Telescope Array (nuf.i12c)», свидетельство о регистрации №2024669915 от 22.08.2024.