

ISSN 1561-8358 (Print)

ISSN 2524-244X (Online)

УДК 544.58

<https://doi.org/10.29235/1561-8358-2019-64-4-477-484>

Поступила в редакцию 19.12.2018

Received 19.12.2018

А. Я. Малиборский<sup>1</sup>, П. В. Тылец<sup>1</sup>, Д. И. Бринкевич<sup>1,2</sup>, С. Д. Бринкевич<sup>1,2</sup>, В. В. Синайко<sup>1</sup><sup>1</sup>Республиканский научно-практический центр онкологии и медицинской радиологии  
имени Н. Н. Александрова, Минск, Беларусь<sup>2</sup>Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь

## ИДЕНТИФИКАЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ВОДЕ КОНТУРА ОХЛАЖДЕНИЯ ЦИКЛОТРОНА CYCLON 18/9-НС

**Аннотация.** Изучены закономерности изменения мощности дозы фотонного излучения от системы водного охлаждения ускорителя Cyclone 18/9-НС при производстве позитрон-излучающих радионуклидов. Показано, что основной реакцией активации воды контура охлаждения циклотрона при производстве  $^{18}\text{F}$  является реакция ( $n, p$ ), в результате которой из  $^{16}\text{O}$  образуется  $^{16}\text{N}$  с периодом полураспада 7 с. В водных мишенях с большой накопленной дозой, когда пучок частично бьет в тело мишени, протекают ядерные реакции, индуцированные протонами:  $^{16}\text{O}(p, \alpha)^{11}\text{C}$  и  $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ . Анионы фторида  $^{18}\text{F}^-$ , карбоната  $^{11}\text{CO}_3^{2-}$  и гидрокарбоната  $\text{H}^{11}\text{CO}_3^-$ , которые образуются в реакциях активации с участием протонов, в процессе циркуляции воды осаждаются на ионно-обменной смоле, что приводит к очистке контура охлаждения от указанных радионуклидов. При облучении газовой мишени не происходит активации воды контура охлаждения. Среднегодовая дозовая нагрузка оператора циклотрона от продуктов активации в контуре охлаждения эквивалентна менее 1 % от предельной годовой дозы персонала от техногенных источников излучения. Для снижения дозовой нагрузки на операторов рекомендуется максимально сокращать продолжительность пребывания персонала на расстоянии менее 1 м от теплообменника во время наработки  $^{18}\text{F}$ . При эксплуатации водных мишеней с набранной дозой свыше 2500 мкА·ч профилактическое обслуживание системы охлаждения желательно проводить не ранее, чем через 30 с после окончания облучения, и обязательно после дозиметрического контроля. С целью снижения активации примесей необходимо использовать в контуре охлаждения только деионизованную воду, а в случае увеличения ее удельной проводимости из-за коррозии – своевременно менять.

**Ключевые слова:** циклотрон, система охлаждения,  $^{18}\text{F}$ , радионуклиды, активация, позитронно-эмиссионная томография (ПЭТ), радиационная безопасность

**Для цитирования:** Идентификация радионуклидов в воде контура охлаждения циклотрона Cyclon 18/9-НС / А. Я. Малиборский [и др.] // Вест. Нац. акад. наук Беларусі. Сер. фіз.-тэхн. навук. – 2019. – Т. 64, №4. – С. 477–484. <https://doi.org/10.29235/1561-8358-2019-64-4-477-484>

A. Ya. Maliborski<sup>1</sup>, P. V. Tylets<sup>1</sup>, D. I. Brinkevich<sup>1,2</sup>, S. D. Brinkevich<sup>1,2</sup>, V. V. Sinaiko<sup>1</sup><sup>1</sup>N. N. Alexandrov National Cancer Centre of Belarus, Minsk, Belarus<sup>2</sup>Belarusian State University, Minsk, Belarus

## IDENTIFICATION OF RADIONUCLIDES IN COOLING CIRCUIT OF CYCLONE 18/9-NC

**Abstract.** In the present work the patterns of relationship of photonic radiation dose rate from Cyclone 18/9NC water cooling system were studied at production of positron-emitting nuclides. Reaction ( $n, p$ ) was shown to be the main source of activation nuclides in cyclotron cooling water at  $^{18}\text{F}$  production, resulting in formation of  $^{16}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 7$  s) from  $^{16}\text{O}$ . In water targets with high accumulated dose, when beam partially irradiates a target body, proton-induced reactions:  $^{16}\text{O}(p, \alpha)^{11}\text{C}$  and  $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$  take place. Fluoride  $^{18}\text{F}^-$ , carbonate  $^{11}\text{CO}_3^{2-}$  and hydrocarbonate  $\text{H}^{11}\text{CO}_3^-$  anions, formed in proton-induced activation reactions, efficiently precipitate on anion-exchanging resin during water circulation resulting in circuit purification from the named radionuclides. Activation of cooling water does not occur at irradiation of gas targets. Projected annual dose for cyclotron operator from cooling water activation is less than 1 % of annual dose limit for personnel from technogenic radioactive sources. In order to minimize operator's accumulated doses it is recommended to decrease the duration of personnel activities at the distance less than 1 meter from heat exchanger during  $^{18}\text{F}$  production. At operation of water targets with absorbed dose higher than 2500  $\mu\text{A}\cdot\text{h}$  it is desirable to conduct the preventive maintenance of water cooling system not earlier than in half an hour after the end of irradiation and with mandatory dosimetry control. To decrease the activation of impurities it is essential to use only deionized water in cooling circuit. In case of its specific conductivity increase due to corrosion the coolant should be replaced promptly.

**Keywords:** cyclotron, water cooling system,  $^{18}\text{F}$ , radionuclides, activation, positron emission tomography (PET), radiation safety

**For citation:** Maliborski A. Ya., Tylets P. V., Brinkevich D. I., Brinkevich S. D., Sinaiko V. V. Identification of radionuclides in cooling circuit of Cyclone 18/9-NC. *Vesti Natsyyanal'nai akademii navuk Belarusi. Seriya fizika-technichnykh navuk = Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physical-technical series*, 2019, vol. 64, no. 4, pp. 477–484 (in Russian). <https://doi.org/10.29235/1561-8358-2019-64-4-477-484>

**Введение.** Основным методом получения радионуклидов для позитронно-эмиссионной томографии (ПЭТ) является облучение протонами стабильных изотопов с использованием циклотронов, ускоряющих частицы до энергий порядка 15–20 МэВ [1–3]. Облучаемое вещество может быть газом, жидкостью или твердым телом. От агрегатного состояния зависит только конструкция мишени. Наиболее распространенным радионуклидом для ПЭТ является  $^{18}\text{F}$ , образующийся при облучении протонами обогащенной по  $^{18}\text{O}$  до 98 % воды ( $\text{H}_2^{18}\text{O}$ ) по реакции  $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ . Вторым по популярности в ПЭТ-диагностике является радионуклид  $^{11}\text{C}$ , который образуется из газообразного  $^{14}\text{N}_2$  по реакции  $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$ .

В процессе облучения воды  $\text{H}_2^{18}\text{O}$  для наработки радионуклида  $^{18}\text{F}$  на мишени циклотрона выделяется мощность  $P \sim 1,5$  кВт [4], что определяет необходимость ее эффективного охлаждения. Для предотвращения перегрева мишеней и других устройств циклотрона при производстве радионуклидов используется водяное охлаждение. При облучении мишеней бомбардирующие протоны, а также вторичные нейтроны, образующиеся в результате  $(p, n)$ -реакции, могут активировать воду в контуре охлаждения.

Чтобы обеспечить возможность профилактического обслуживания и ежедневного осмотра часть элементов системы водяного охлаждения (насосы, баки и т. д.) расположены за пределами бункера циклотрона. Во время работы циклотрона периодически возникает необходимость нахождения персонала вблизи системы охлаждения для контроля параметров теплоносителя. Кроме того, насос и ионообменник системы охлаждения обычно расположены на расстоянии 2,5–3,0 м от пульта управления циклотроном. Указанное обстоятельство обуславливает дополнительную дозовую нагрузку на инженерный персонал циклотронно-радиохимического производства.

*Целью настоящей работы* является исследование процессов активации охлаждающей воды при наработке активности на жидкостных и газовых мишенях циклотрона Cyclone 18/9-НС для обеспечения радиационной безопасности

**Материалы и методы.** Нарботку радионуклидов  $^{18}\text{F}$  и  $^{11}\text{C}$  осуществляли на ускорителе Cyclone 18/9-НС с мишенями NIRTA<sup>®</sup> [5]. Система водяного охлаждения циклотрона Cyclone 18/9-НС (Бельгия) используется не только для охлаждения мишеней, но и других нагреваемых частей – масляного диффузионного насоса, дуантов, источников ионов, гелиевого насоса, источников постоянного магнитного и переменного электрического полей. Для очистки воды от примесей в контуре охлаждения Cyclone 18/9-НС используется ионообменная смола, через которую циркулирует охлаждающая вода.

При охлаждении мишени циклотрона охлаждающая вода подается со стороны, противоположной входу ионного пучка, и протекает в непосредственной близости от камеры с облучаемой обогащенной по  $^{18}\text{O}$  водой  $\text{H}_2^{18}\text{O}$  (толщина стенки 0,5 мм). Указанное обстоятельство обуславливает высокую вероятность активации воды охлаждения при наработке радионуклидов для позитронно-эмиссионной томографии на Cyclone 18/9-НС. В системе охлаждения ускорителя использовалась высокодеионизованная вода.

Мощность дозы излучения  $P$  от воды из контура охлаждения измерялась дозиметром ДКС-АТ1 121 в двух точках: на расстоянии 10 см от бака теплообменника системы охлаждения (точка 1) и на расстоянии 10 см от колонки с ионно-обменной смолой на уровне границы жидкости (точка 2). Измерения проводились в импульсном режиме (длительность интегрирования 2 с) и режиме накопления.

**Экспериментальные результаты и их обсуждение.** Активация охлаждающей воды существенным образом зависит от типа мишени (газовая или жидкостная) и накопленной на мишени дозы. Так, при облучении газовой мишени существенной активации охлаждающей воды не наблюдалось – мощность дозы в точке 1 не превышала 0,25 мкЗв/ч и была близка к фоновой для данного помещения.

При облучении водных мишеней активация воды контура охлаждения зависит от накопленной на мишени дозы. Так, во время бомбардировки мишени с дозовой нагрузкой менее 1000 мкА·ч до начала цикла исследований («чистая» мишень) мощность дозы в точке 1 варьировалась в пределах 6,9–7,5 мкЗв/ч, в то время как при облучении мишени с дозовой нагрузкой свыше 2500 мкА·ч («грязная» мишень) в той же точке мощность дозы составляла 25–27 мкЗв/ч. Однако на расстоянии 2,5 м от насоса системы охлаждения мощность дозы  $\gamma$ -излу-

чения не превышала 0,25 мкЗв/ч. Кроме того, для «грязной» и «чистой» мишеней существенно отличался характер накопления активности после начала облучения и спада мощности дозы после окончания процесса.

В начальный период облучения «чистой» мишени накопление мощности в обеих точках происходит однотипно с выходом на насыщение в течение 1–3 мин (рис. 1, а). Для «грязной» мишени кривые накопления мощности дозы  $P$  в точках 1 (теплообменник) и 2 (ионообменник) выглядят по-разному (рис. 1, б). Такой характер накопления активности свидетельствует об осаждении на анионообменной смоле  $\gamma$ -излучающих нуклидов с достаточно высокими (десятки минут) периодами полураспада. При облучении «чистой» мишени такого осаждения не наблюдается.

Кривые спада мощности дозы  $P$  после окончания облучения разных мишеней также существенно отличаются. Для «чистой» мишени мощность дозы падает до фонового уровня за 1 мин (рис. 2, а). На кривых спада активности с высокой достоверностью ( $R_{sq} = 0,97–0,99$ ) выделяется участок, соответствующий распаду радионуклида с периодом полураспада  $T_{1/2}$  около 7 с. При разных циклах облучения измеренные значения  $T_{1/2}$  варьировались в диапазоне 6,6–7,1 с.

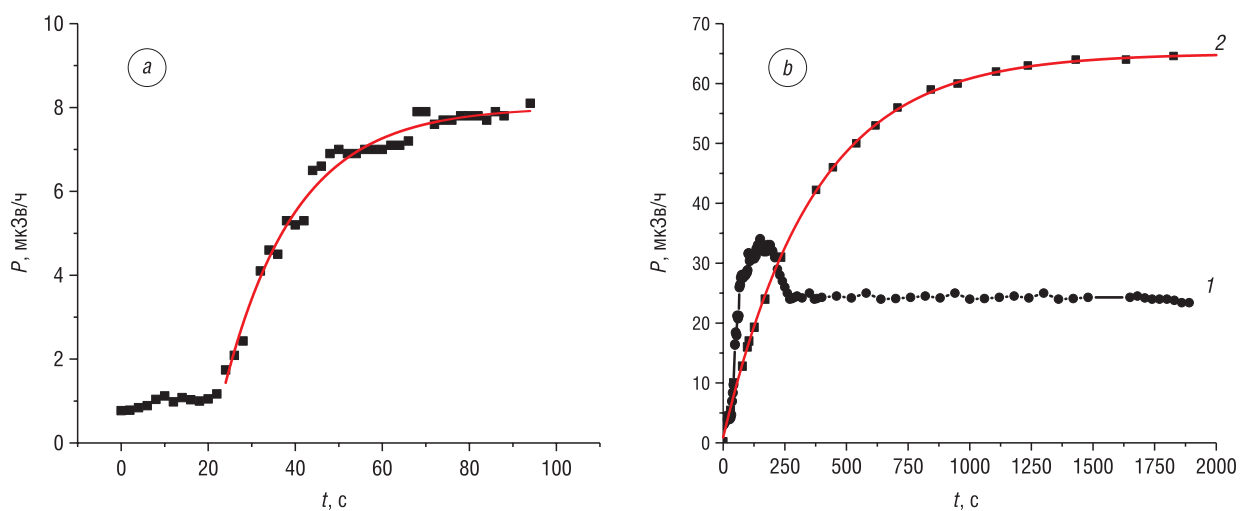


Рис. 1. Изменения мощности дозы при облучении «чистой» (а) и «грязной» (б) мишеней. Кривые: 1 – точка 1 (теплообменник), 2 – точка 2 (ионообменник)

Fig. 1. Dose rate alterations at irradiation of “clean” (a) and “dirty” (b) targets. Curves: 1 – point 1 (heat exchanger), 2 – point 2 (ion exchange)

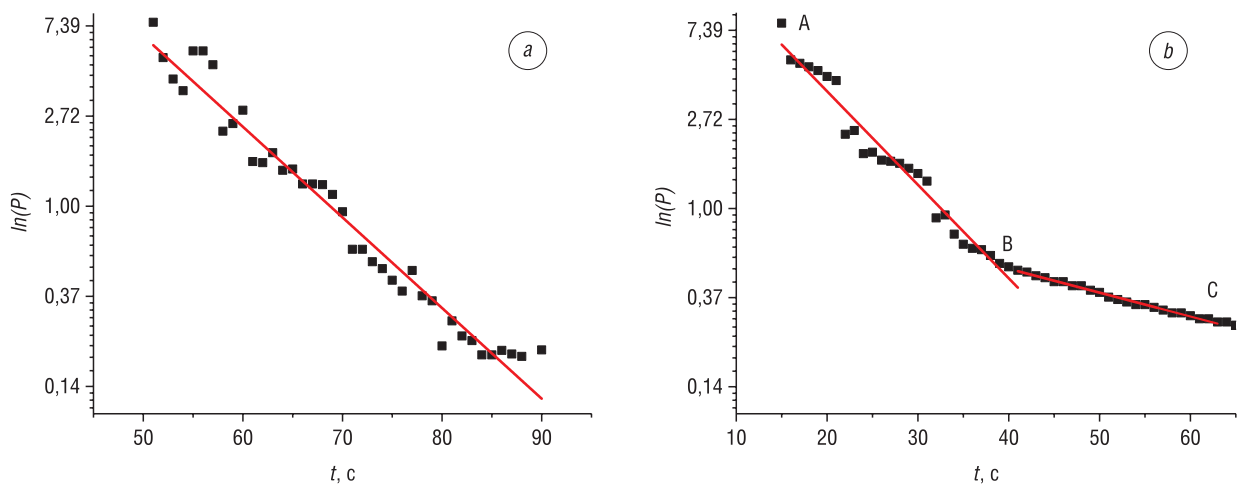


Рис. 2. Кривые спада мощности дозы от воды контура охлаждения после прекращения облучения «чистой» мишени. Доза облучения, мкА·ч: а – 95; б – 150

Fig. 2. Dose rate decay curves from the water cooling circuit after cessation of irradiation of the “clean” target. Radiation dose,  $\mu\text{A}\cdot\text{h}$ : а – 95, б – 150

Для определения природы радионуклида, ответственного за этот участок распада, нами были рассмотрены возможные реакции протонов и нейтронов с изотопами кислорода, приводящие к образованию  $\gamma$ -излучающих радионуклидов. Результаты исследования приведены в таблице.

**Наиболее вероятные ядерные реакции, протекающие с образованием  $\gamma$ -излучающих радионуклидов, при взаимодействии изотопов кислорода с протонами и нейтронами**

**The most likely nuclear reactions for the formation of  $\gamma$ -emitting radionuclides, which occur in the interaction of oxygen isotopes with protons and neutrons**

| № п/п | Реакция                                 | Тип распада; энергия $\gamma$ -квантов        | Период полураспада [6] | Сечение ядерной реакции [6], барн                  |
|-------|---|---|------------------------|--|
| 1     | $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$      | $\beta^-$ ; $\gamma$ 120,4; 298,2; 397,3 кэВ  | 7,13 с                 | 0,1 при 10 МэВ                                     |
| 2     | $^{18}\text{O}(n, \alpha)^{15}\text{C}$ | $\beta^-$ ; $\gamma$ 740 кэВ                  | 2,45 с                 | 0,01 при 7–18 МэВ                                  |
| 3     | $^{18}\text{O}(n, \gamma)^{19}\text{O}$ | $\beta^-$ ; $\gamma$ 112; 200; 1390; 1478 кэВ | 24 с                   | $\sim 10^{-3}$ на тепловых и резонансных нейтронах |
| 4     | $^{16}\text{O}(p, \alpha)^{13}\text{N}$ | $\beta^+$ ; $\gamma$ 511 кэВ                  | 606 с                  | $(1,2-1,8) \cdot 10^{-5}$ при 3–15 МэВ             |
| 5     | $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$      | $\beta^+$ ; $\gamma$ 511 кэВ                  | 108,9 мин              | 0,586 при 5 МэВ                                    |

**П р и м е ч а н и е.** В таблице не приведены реакции, протекающие с образованием стабильных изотопов (например,  $^{16}\text{O}(n, \alpha)^{13}\text{C}$ ).

Нами установлено, что таким радионуклидом, вероятнее всего, является радиоизотоп азота  $^{16}\text{N}$  (таблица, реакция 1). Он образуется в результате взаимодействия нейтрона с наиболее распространенным в природной смеси изотопом кислорода  $^{16}\text{O}$  по реакции  $(n, p)$ , которая протекает с высоким сечением 0,1 барн. Заниженные экспериментальные значения  $T_{1/2}$ , вероятнее всего, обусловлены наличием еще одного более короткоживущего радионуклида  $^{15}\text{C}$  с периодом полураспада 2,45 с. Этот радионуклид не мог быть зарегистрирован нами, поскольку время срабатывания дозиметра ДКС-АТ1 121 в импульсном режиме составляет  $\sim 2$  с.

При длительном облучении (доза за один исследовательский цикл  $\geq 140$  мкА·ч) «чистой» мишени на кривых спада мощности дозы кроме участка, обусловленного радионуклидом  $^{16}\text{N}$  (рис. 2, *b*, прямая *AB*), дополнительно проявляется еще один радионуклид с периодом полураспада  $\sim 25$  с (рис. 2, *b*, прямая *BC*). Полученные данные показывают, что это, вероятнее всего, радиоизотоп кислорода  $^{19}\text{O}$ , образующийся из присутствующего в естественной смеси изотопа кислорода  $^{18}\text{O}$  в результате реакции  $(n, \gamma)$  (таблица, реакция 3). Активность указанного радионуклида при работе ускорителя на мощности низка. Так, согласно нашим оценкам, мощность дозы, обусловленная  $^{19}\text{O}$ , примерно в 30 раз ниже мощности дозы от наиболее активного радионуклида  $^{16}\text{N}$ .

На кривых спада мощности дозы в точке 1 после окончания облучения «грязной» мишени кроме быстрого снижения  $\ln(P)$ , обусловленного распадом  $^{16}\text{N}$  с  $T_{1/2} = 7,13$  с и аналогичного показанному на рис. 2, *a*, дополнительно наблюдался участок долговременного спада, характерный для изотопа с периодом полураспада  $T_{1/2} \sim 10$  мин и представленный на рис. 3, *a*. Предположительно, ответственен за этот участок изотоп  $^{13}\text{N}$ , образующийся по  $(p, \alpha)$ -реакции из  $^{16}\text{O}$  (таблица, реакция 4). Вклад указанного радионуклида в общую мощность дозы при облучении «грязной» мишени составлял до 60 % несмотря на то, что он имеет относительно большой период полураспада. Это свидетельствует о высокой эффективности реакции  $^{16}\text{O}(p, \alpha)^{13}\text{N}$  при облучении «грязной» мишени. Отметим, что  $^{13}\text{N}$  является сопутствующим при наработке  $^{18}\text{F}$  из обогащенной по  $^{18}\text{O}$  воды [1, 2, 7, 8].

На кривых спада мощности дозы от времени для емкости с анионообменной смолой (точка 2) после окончания облучения «грязной» мишени наблюдаются два долговременных участка, обусловленных распадом радионуклидов с периодами полураспада около 19 и 109 мин соответственно (рис. 3, *b*). Один из них обусловлен распадом радионуклида  $^{18}\text{F}$  (период полураспада 109,8 мин), образующегося по реакции  $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$  из присутствующего в естественной смеси изотопа кислорода  $^{18}\text{O}$  (таблица, реакция 5). Этот изотоп хорошо абсорбируется из водного раствора анионообменной смолой [1, 4]. Второй участок спада активности, вероятнее всего, связан с распадом радиоизотопа углерода  $^{11}\text{C}$  (период полураспада 20,4 мин). Он, предположительно, образуется при облучении примесных атомов азота или углерода. Возможные реакции образо-

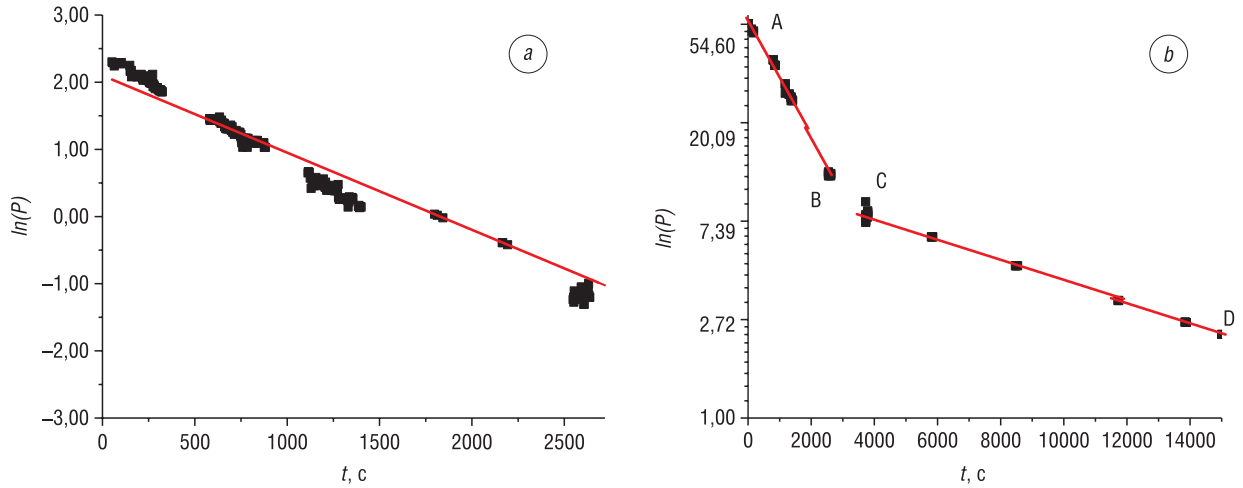


Рис. 3. Кривые спада мощности дозы от воды контура охлаждения в точках 1 (а) и 2 (b) после прекращения облучения «грязной» мишени

Fig. 3. Dose rate decay curves from the water of the cooling circuit at points 1 (a) and 2 (b) after cessation of irradiation of the “dirty” target

вания указанного радионуклида могут быть  $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$  и  $^{12}\text{C}(p, pn)^{11}\text{C}$ . Отметим, что реакция  $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$  (пороговая энергия 3,09 МэВ) широко применяется при наработке  $^{11}\text{C}$  на использованном в настоящей работе циклотроне Cyclone 18/9-НС и имеет высокое сечение реакции 0,37–0,12 барн в диапазоне от 4 до 10 МэВ. Пороговая энергия реакции  $^{12}\text{C}(p, pn)^{11}\text{C}$  составляет 20,3 МэВ [9] и в наших условиях она маловероятна. Радионуклид углерода  $^{11}\text{C}$  ответственен за ~ 85 % мощности дозы на анионообменной смоле, в то время как анион  $^{18}\text{F}^-$  обеспечивает только 15 % мощности дозы в точке 2 при облучении водной мишени. Образование радионуклида  $^{11}\text{C}$  обусловлено, вероятнее всего, присутствием в воде контура охлаждения растворенного газообразного азота. Радионуклид  $^{11}\text{C}$  осаждается на ионообменнике в химической форме  $\text{HCO}_3^-$  или  $\text{CO}_3^{2-}$ . Необходимость снижения активации примесей, а также увеличение эффективности сорбции радионуклидов в анионной форме предопределяет целесообразность использования в системе охлаждения Cyclone 18/9-НС деионизированной воды для снижения дозовой нагрузки на персонал.

Полученные экспериментальные результаты можно объяснить следующим образом. Как отмечалось ранее, при облучении водной мишени с обогащенной по  $^{18}\text{O}$  водой (изотопная чистота > 95 %) для наработки нуклида  $^{18}\text{F}$  интенсивно протекает реакция  $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ . Образовавшиеся в результате этой реакции вторичные нейтроны активируют охлаждающую мишень  $\text{H}_2^{16}\text{O}$ -воду по реакциям 1–3 (см. таблицу). При этом образуются радионуклиды  $^{16}\text{N}$ ,  $^{15}\text{C}$  и  $^{19}\text{O}$  с периодами полураспада от 2,45 до 24,0 с. Поэтому после облучения «чистой» мишени, когда весь пучок протонов попадает в облучаемую обогащенную по  $^{18}\text{O}$  воду, спад мощности дозы до фоновых значений происходит очень быстро – за 1–3 мин. В этом случае протоны не достигают воды контура охлаждения циклотрона, и поэтому в ней наблюдаются только реакции со вторичными нейтронами, обладающими значительно более высокой проникающей способностью, чем протоны. Приоритетным является протекание реакции  $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$ , имеющей более высокое сечение. При длительном облучении мишени возможно также обнаружение радионуклида  $^{19}\text{O}$ , образующегося по реакции  $(n, \gamma)$  из стабильного изотопа  $^{18}\text{O}$ . Сечение этой реакции существенно ниже, однако период полураспада в ~ 3 раза выше, чем у  $^{16}\text{N}$ , что и обуславливает проявление  $^{19}\text{O}$  при длительном облучении.

В «грязной» мишени из-за большой дозовой нагрузки возможна частичная деформация окна мишени и устройства перезарядки ионов (стриппер), вследствие этого протонный пучок может бомбардировать не только облучаемую обогащенную по  $^{18}\text{O}$  воду, но и внутреннюю поверхность ниобиевой мишени, на расстоянии ~ 0,5 мм от которой находятся каналы для воды охлаждения. Потери энергии протонов в теле мишени составляют ~ 1 МэВ на 100 мкм [7]. С учетом начальной энергии протонов 18 МэВ становятся возможными реакции атомов охлаждающей воды не



только с нейтронами, но и с протонами. Причем для протонов будут возможны реакции с граничными энергиями не выше 10–11 МэВ. Вследствие этого могут наблюдаться реакции 4 и 5 из таблицы, в результате которых образуются радионуклиды  $^{13}\text{N}$  и  $^{18}\text{F}$ .

Анион  $^{18}\text{F}^-$  и меченые анионы карбоната ( $^{11}\text{CO}_3^-$ ) и гидрокарбоната ( $\text{H}^{11}\text{CO}_3^-$ ), образующиеся в реакциях с участием протонов, в процессе циркуляции воды по контуру охлаждения осаждаются и накапливаются на ионно-обменной смоле. Таким образом, осуществляется очистка воды контура охлаждения от указанных радионуклидов. Указанное обстоятельство обуславливает разный характер спада мощности дозы на емкости с ионообменной смолой (точка 2) и на выходе воды из насоса (точка 1, см. рис. 3, б).

При облучении газовой мишени протекает реакция  $^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$ . Образующиеся в ее результате  $\alpha$ -частицы обладают чрезвычайно низкой проникающей способностью (несколько десятков микрометров) и не способны достигать каналов охлаждения мишени. Таким образом, активации охлаждающей газовую мишень воды не происходит. С учетом низких значений силы тока при наработке  $^{11}\text{C}$  (менее 40 мкА) и малых наработок за цикл облучения ( $< 25\text{--}30$  мкА·ч) деформации окна мишени и устройства перезарядки ионов в вакуумной камере ускорителя не происходят, поэтому протоны не попадают через стенку мишени в воду охлаждения.

Представленные в настоящей работе экспериментальные результаты существенно отличаются от приведенных в [1, 3, 4, 7, 10, 11] данных по накоплению радионуклидов в облученной воде, обогащенной по  $^{18}\text{O}$ . В отличие от облученной  $\text{H}_2^{18}\text{O}$ -воды в охлаждающей  $\text{H}_2^{16}\text{O}$ -воде не обнаружено долгоживущих радионуклидов металлов – хрома, марганца, кобальта, ниобия, технеция и рения, которые образуются при взаимодействии протонов с телом и входным окном жидкостной мишени и затем вымываются облучаемой водой [1, 10, 11]. Не присутствует также и радиоизотоп  $^7\text{Be}$ , который образуется в процессе протонной активации примесей, содержащихся в облучаемой  $\text{H}_2^{18}\text{O}$ -воде [10]. Это связано с низкими интенсивностью и энергией протонов в охлаждаемой водой проточной части мишени, а также с другим химическим составом облучаемых материалов.

Полученные экспериментальные данные были использованы для оценки дозовой нагрузки операторов циклотрона (согласно нормативным документам Республики Беларусь: Санитарные нормы и правила «Требования к радиационной безопасности», утв. постановлением Министерства здравоохранения Республики Беларусь от 28 декабря 2012 г. №213; Санитарные нормы и правила «Требования к обеспечению радиационной безопасности персонала и населения при осуществлении деятельности по использованию атомной энергии и источников ионизирующего излучения», утв. постановлением Министерства здравоохранения Республики Беларусь от 31.12.2013 №137) при ежедневном контроле работы системы охлаждения циклотрона. В среднем для проверки температуры и расходов воды персонал проводит в помещении водного кондиционера не более 2 мин во время наработки радионуклида. Для консервативной оценки допустим, что все 250 смен в году проводится облучение «грязной» мишени, и оператор работает в 10 см от теплообменника. В этом случае дозовая нагрузка составит 208 мкЗв/год, что эквивалентно примерно 1 % от предельной дозы для персонала от техногенных источников излучения (Гигиенический норматив «Критерии оценки радиационного воздействия», утв. постановлением Министерства здравоохранения Республики Беларусь от 28 декабря 2012 г. №213).

Снижение дозовой нагрузки на операторов ускорителя Cyclone 18/9-НС может быть достигнуто при выполнении следующих рекомендаций. Во-первых, необходимо сократить продолжительность пребывания персонала вблизи теплообменника (на расстоянии менее 1 м) во время наработки  $^{18}\text{F}$ , особенно при эксплуатации мишеней с набранной дозой свыше 2500 мкА·ч («грязная» мишень). В случае облучения газовых мишеней для производства  $^{11}\text{CO}_2$  или  $^{11}\text{CH}_4$  такие ограничения не целесообразны. Во-вторых, профилактическое обслуживание системы охлаждения желательнее проводить не ранее, чем через 30 мин после окончания облучения водной мишени и обязательно после дозиметрического контроля. Для снижения активации примесей и, как следствие, уменьшения мощности дозы  $\gamma$ -излучения от системы охлаждения необходимо использовать деионизованную воду в контуре охлаждения, а в случае увеличения ее удельной проводимости из-за коррозии – своевременно менять.

**Заклучение.** Таким образом, установлено, что основной реакцией активации воды контура охлаждения циклотрона при производстве  $^{18}\text{F}$  является  $(n, p)$ -реакция, в результате которой из  $^{16}\text{O}$  образуется  $^{16}\text{N}$  с периодом полураспада 7 с. В водных мишенях с большой дозой нагрузки (при наличии деформации входного окна мишени, когда пучок бьет в тело мишени) протекают ядерные реакции, индуцированные протонами  $^{16}\text{O}(p, \alpha)^{11}\text{C}$  и  $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ , а также появляется возможность целого ряда других реакций протонов с атомами примесей, присутствующими в воде контура охлаждения. Анионы  $^{18}\text{F}^-$ ,  $^{11}\text{CO}_3^{2-}$  и  $\text{H}^{11}\text{CO}_3^-$ , образующиеся в реакциях с участием протонов, в процессе циркуляции воды по контуру охлаждения осаждаются на ионно-обменной смоле, что приводит к очистке охлаждающей воды от указанных радионуклидов. При облучении газовой мишени не происходит активации воды контура охлаждения. Показано, что среднегодовая дозовая нагрузка оператора циклотрона при ежедневном контроле работы системы охлаждения циклотрона не превысит 208 мкЗв/год, что составляет менее 1 % от предельной годовой дозы персонала от техногенных источников излучения. Выявленные в работе закономерности изменения мощности дозы фотонного излучения от системы охлаждения циклотрона Cyclone 18/9-НС позволяют за счет внедрения организационных мероприятий снизить облучение инженерного персонала циклотронно-радиохимических производств ПЭТ-центров. Представленные сведения о радионуклидном составе водного теплоносителя Cyclone 18/9-НС имеют важное значение для специалистов, занимающихся проектированием радиационно-опасных объектов, и обоснованием инженерных барьеров на случай радиационных аварий.

#### Список использованных источников

1. Radionuclide impurities in proton-irradiated  $^{18}\text{O}$  for the production of  $^{18}\text{F}^-$ : Activities and distribution in the  $^{18}\text{F}$ FDG synthesis process / L. Bowden [et al.] // *Appl. Radiat. Isot.* – 2009. – Vol. 67, №2. – P. 248–255. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2008.10.015>
2. Позитронно-эмиссионная томография. Ч. 1: Характеристика метода. Получение радиофармпрепаратов / С. Д. Бринкевич [и др.] // *Мед.-биол. проблемы жизнедеятельности.* – 2013. – №2 (10). – С. 129–137.
3. Monte Carlo simulation and radiometric characterization of proton irradiated  $^{18}\text{F}$  for the treatment of the waste streams originated from  $^{18}\text{F}$ FDG synthesis process / R. Remetti [et al.] // *Appl. Radiat. Isot.* – 2011. – Vol. 69, №7. – P. 1046–1051. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2011.02.008>
4. Niobium sputtered Havar foils for the high-power production of reactive  $^{18}\text{F}$  fluoride by proton irradiation of  $^{18}\text{F}$  targets / J. S. Wilson [et al.] // *Appl. Radiat. Isot.* – 2008. – Vol. 66, №5. – P. 565–570. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2007.12.004>
5. Cyclotron produced radionuclides: Operation and maintenance of gas and liquid targets / International Atomic Energy Agency. – Vienna: IAEA, 2012 – 103 p. – (IAEA radioisotopes and radiopharmaceuticals. Series no. 4).
6. Chu, S. Y. F. The Lund/LBNL Nuclear Data Search [Electronic resource] / S. Y. F. Chu, L. P. Ekström, R. B. Firestone. – Mode of access: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/> – Date of access: 18.12.2018.
7. Radionuclide impurities in  $^{18}\text{F}$  and  $^{18}\text{F}$ FDG for positron emission tomography / M. Kohler [et al.] // *Appl. Radiat. Isot.* – 2013. – Vol. 81. – P. 268–271. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.03.044>
8. Quantification of the activity of tritium produced the routine synthesis of  $^{18}\text{F}$  fluorodeoxyglucose for positron emission tomography / C. Marshall [et al.] // *J. Radiological Protection.* – 2014. – Vol. 34, №2. – P. 435–444. <https://doi.org/10.1088/0952-4746/34/2/435>
9. Evaluated Nuclear Data File [Electronic resource]. – Mode of access: <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm> – Date of access: 09.10.2018.
10. Долгоживущие радионуклиды при производстве  $^{18}\text{F}$  фторхолина для ПЭТ-диагностики / П. В. Тылец [и др.] // *Вест. Нац. акад. наук Беларусі. Сер. хім. навук.* – 2018. – Т. 54, №3. – С. 359–368. <https://doi.org/10.29235/1561-8331-2018-54-3-359-368>
11. Обращение с водными радиоактивными отходами при производстве радиофармпрепаратов на основе  $^{18}\text{F}$  / В. О. Крот [и др.] // *Вестн. Полоц. гос. ун-та. Сер. С, Фундаментальные науки. Физика.* – 2018. – №4. – С. 128–134.

#### References

1. Bowden L., Vintró L. L., Mitchell P. I., O'Donnell R. G., Seymour A. M., Duffy G. J. Radionuclide impurities in proton-irradiated  $^{18}\text{O}$  for the production of  $^{18}\text{F}^-$ : Activities and distribution in the  $^{18}\text{F}$ FDG synthesis process. *Applied Radiation and Isotopes*, 2009, vol. 67, no. 2, pp. 248–255. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2008.10.015>
2. Brinkevich S. D., Sukonko O. G., Chizh G. V., Naumovich A. S. Positron emission tomography. Part 1: Method description. Production of radiopharmaceuticals. *Mediko-biologicheskie problemy zhiznedeyatel'nosti* [Medical and Biological Problems of Life Activity], 2013, no. 2 (10), pp. 129–137 (in Russian).
3. Remetti R., Burgio N. T., Arcese M., Filannino M. A. Monte Carlo simulation and radiometric characterization of proton irradiated  $^{18}\text{F}$  for the treatment of the waste streams originated from  $^{18}\text{F}$ FDG synthesis process. *Applied Radiation and Isotopes*, 2011, vol. 69, no. 7, pp. 1046–1051. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2011.02.008>

4. Wilson J. S., Avila-Rodriguez M. A., Johnson R. R., Zyuzin A., McQuarrie S. A. Niobium sputtered Havar foils for the high-power production of reactive [ $^{18}\text{F}$ ]fluoride by proton irradiation of [ $^{18}\text{F}$ ]H $_2$ O targets. *Applied Radiation and Isotopes*, 2008, vol. 66, no. 5, pp. 565–570. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2007.12.004>
5. *Cyclotron produced radionuclides: Operation and maintenance of gas and liquid targets. IAEA radioisotopes and radiopharmaceuticals Series No. 4.* Vienna, International Atomic Energy Agency, 2012. 103 p.
6. Chu S. Y. F., Ekström L. P., Firestone R. B. *The Lund /LBNL Nuclear Data Search*. 1999. Available at: <http://nuclear-data.nuclear.lu.se/toi/> (accessed 18 December 2018).
7. Kohler M., Degering D., Zessin J., Fuchtnr F., Konheiser J. Radionuclide impurities in [ $^{18}\text{F}$ ]F $^-$  and [ $^{18}\text{F}$ ]FDG for positron emission tomography. *Applied Radiation and Isotopes*, 2013, vol. 81, pp. 268–271. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.03.044>
8. Marshall C., Talboys M. A., Bukhari S., Evans W. D. Quantification of the activity of tritium produced the routine synthesis of  $^{18}\text{F}$  fluorodeoxyglucose for positron emission tomography. *Journal of Radiological Protection*, 2014, vol. 34, no. 2, pp. 435–444. <https://doi.org/10.1088/0952-4746/34/2/435>
9. *Evaluated Nuclear Data File*. Available at: <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm> (accessed 09 October 2018).
10. Tylets P. V., Tugay O. V., Krot V. O., Ivaniykovich A. A., Soroka S. A., Brinkevich D. I., Brinkevich S. D., Baranovski O. A., Chizh G. V. Long-lived radionuclides in the production of [ $^{18}\text{F}$ ]fluorocholine for PET-diagnosis. *Vesti Natsyonal'noi akademii navuk Belarusi. Seryya khimichnykh navuk = Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Chemical series*, 2018, vol. 54, no. 3, pp. 359–368 (in Russian). <https://doi.org/10.29235/1561-8331-2018-54-3-359-368>
11. Krot V. O., Tugay O. V., Brinkevich D. I., Brinkevich S. D., Chizh G. V., Vabishchevich S. A. Management of aqueous radioactive wastes in the production of  $^{18}\text{F}$ -labeled radiopharmaceuticals. *Vestnik Polotskogo gosudarstvennogo universiteta. Seriya C. Fundamental'nyye nauki. Fizika = Vestnik of Polotsk State University. Series C. Fundamental sciences. Physic*, 2018, no. 4, pp. 128–134 (in Russian).

### Информация об авторах

*Малиборский Артем Ярославович* – техник-лаборант, РНПЦ онкологии и медицинской радиологии им. Н.Н. Александрова (223040, а/г Лесной-2, Минский р-н, Республика Беларусь). E-mail: [che.malibors@mail.ru](mailto:che.malibors@mail.ru)

*Тылец Павел Валентинович* – инженер по радиационному и дозиметрическому контролю, РНПЦ онкологии и медицинской радиологии им. Н.Н. Александрова (223040, а/г Лесной-2, Минский р-н, Республика Беларусь). E-mail: [5472469@gmail.com](mailto:5472469@gmail.com)

*Бринкевич Дмитрий Иванович* – кандидат физико-математических наук, инженер по учету и хранению ядерных и радиоактивных материалов, РНПЦ онкологии и медицинской радиологии им. Н.Н. Александрова (223040, а/г Лесной-2, Минский р-н, Республика Беларусь); ведущий научный сотрудник, Белорусский государственный университет (пр. Независимости, 4, 220030, Минск, Республика Беларусь). E-mail: [brinkevich@bsu.by](mailto:brinkevich@bsu.by)

*Бринкевич Святослав Дмитриевич* – кандидат химических наук, заведующий изотопной циклотронно-радиохимической лабораторией отделения позитронно-эмиссионной томографии, РНПЦ онкологии и медицинской радиологии им. Н.Н. Александрова (223040, а/г Лесной-2, Минский р-н, Республика Беларусь); доцент, Белорусский государственный университет (пр. Независимости, 4, 220030, Минск, Республика Беларусь). E-mail: [brinkevichsd@bsu.by](mailto:brinkevichsd@bsu.by)

*Синайко Валерий Васильевич* – кандидат медицинских наук, заведующий отделением позитронно-эмиссионной томографии, РНПЦ онкологии и медицинской радиологии им. Н.Н. Александрова (223040, а/г Лесной-2, Минский р-н, Республика Беларусь).

### Information about the authors

*Artyom Ya. Maliborskiy* – Laboratory Technician, N.N. Alexandrov National Cancer Centre of Belarus (223040, a/g Lesnoi-2, Minsk District, Republic of Belarus). E-mail: [che.malibors@mail.ru](mailto:che.malibors@mail.ru)

*Pavel V. Tylets* – Engineer for radiation and dosimetry monitoring, N.N. Alexandrov National Cancer Centre of Belarus (223040, a/g Lesnoi-2, Minsk District, Republic of Belarus). E-mail: [5472469@gmail.com](mailto:5472469@gmail.com)

*Dmitrii I. Brinkevich* – Ph. D. (Physics and Mathematics), Engineer for the registration and storage of nuclear and radioactive materials, N.N. Alexandrov National Cancer Centre of Belarus (223040, a/g Lesnoi-2, Minsk District, Republic of Belarus); Leading Researcher, Belarusian State University (4, Nezavisimosti Ave., 220030, Minsk, Republic of Belarus). E-mail: [brinkevich@bsu.by](mailto:brinkevich@bsu.by)

*Svyatoslav D. Brinkevich* – Ph. D. (Chemistry), Head of Cyclotron-Radiochemistry Laboratory, N.N. Alexandrov National Cancer Centre of Belarus (223040, a/g Lesnoi-2, Minsk District, Republic of Belarus); Associate Professor, Belarusian State University (4, Nezavisimosti Ave., 220030, Minsk, Republic of Belarus). E-mail: [brinkevichsd@bsu.by](mailto:brinkevichsd@bsu.by)

*Valerii V. Sinaiko* – Ph. D. (Medicine), Head of Positron Emission Tomography Division, N.N. Alexandrov National Cancer Centre of Belarus (223040, a/g Lesnoi-2, Minsk District, Republic of Belarus).