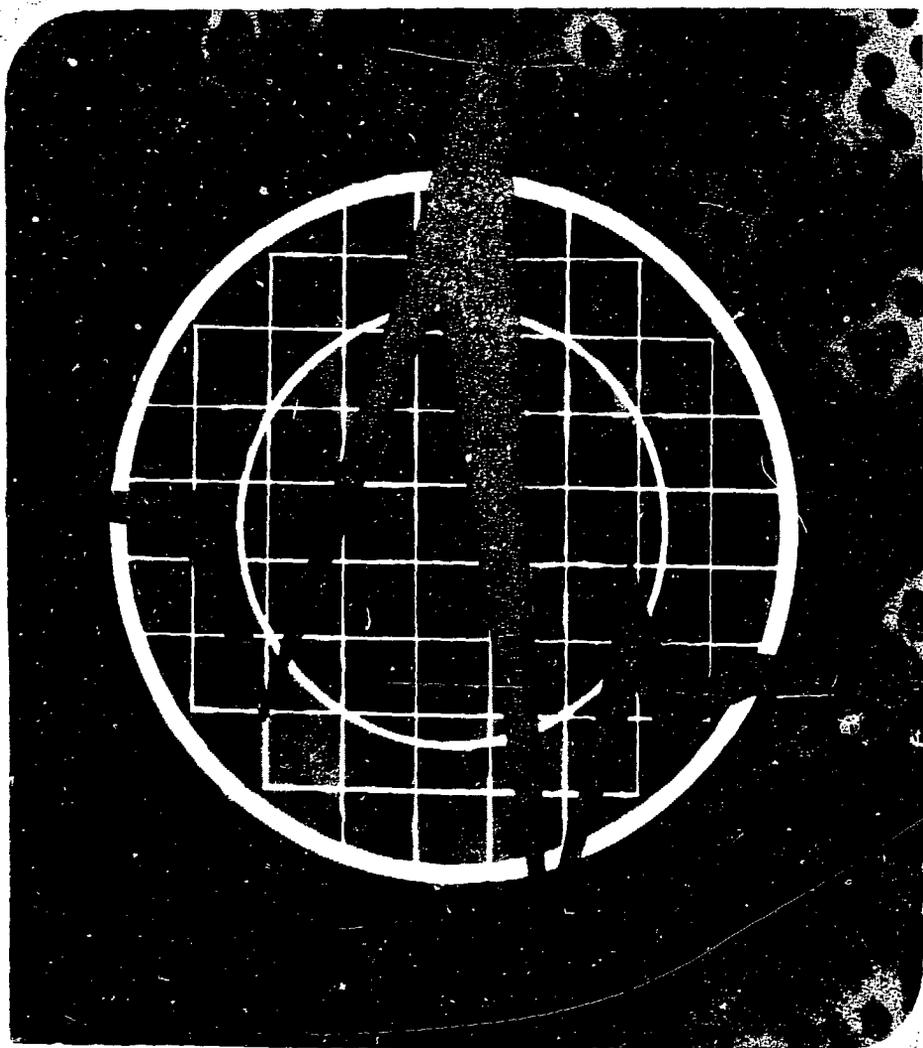


JINR R-18-12147

**СОВЕЩАНИЕ ПО ИСПОЛЬЗОВАНИЮ НОВЫХ
ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ
ДЛЯ РЕШЕНИЯ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИХ
И НАРОДНОХОЗЯЙСТВЕННЫХ ЗАДАЧ**

SUBO 11706 - 11739



P18 - 12147

**III СОВЕЩАНИЕ
ПО ИСПОЛЬЗОВАНИЮ
ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ
ДЛЯ РЕШЕНИЯ
НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИХ
И НАРОДНОХОЗЯЙСТВЕННЫХ ЗАДАЧ**

Дубна 12-15 сентября 1978 года

 **Дубна 1979**

С 12 по 15 сентября 1978 г. в Дубне проходило организованное Объединенным институтом ядерных исследований III Совещание по использованию ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. В совещании приняли участие специалисты из всех стран-участниц ОИЯИ.

Программа совещания включала вопросы элементного и структурного анализа на пучках заряженных частиц и нейтронов применительно к задачам народного хозяйства, медико-биологические аспекты использования ядерно-физических методов и ядерных излучений, вопросы развития криогенной техники и автоматизированных систем обработки информации прикладного назначения, а также использования пропорциональных и дрейфовых камер в смежных областях науки.

В сборник вошли доклады и сообщения, полностью подготовленные к печати и представленные в Оргкомитет в установленный срок.

Мы признательны дирекции и международному отделу ОИЯИ за помощь в проведении Совещания, а также издательскому отделу за выпуск настоящего сборника.

Оргкомитет Совещания:

Г. Н. Флеров	- председатель
Ю. Н. Денисов	- зам. председателя
А. Д. Коваленко	- отв. секретарь
В. Я. Выропаев	- чл. оргкомитета
А. А. Карлов	- " "
В. М. Назаров	- " "
А. Ф. Писарев	- " "
В. И. Приходько	- " "
В. Р. Саранцева	- " "
О. В. Савченко	- " "

Материалы к изданию подготовили: В. Я. Выропаев, А. Д. Коваленко, В. М. Назаров, О. В. Савченко.

ИНТЕРНАЦИОНАЛЬНЫЙ КОЛЛЕКТИВ ИНСТИТУТА, КОНЦЕНТРИРУЯ УСИЛИЯ НА РЕШЕНИИ СВОИХ ОСНОВНЫХ ЗАДАЧ, СТРЕМИТСЯ ШИРЕ ИСПОЛЬЗОВАТЬ РЕЗУЛЬТАТЫ И МЕТОДЫ ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ, МОЩНЫЕ УСКОРИТЕЛИ И РЕАКТОРЫ, КОТОРЫМИ ОСНАЩЕНЫ ЛАБОРАТОРИИ, УНИКАЛЬНУЮ АППАРАТУРУ И ПРИБОРЫ, ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНЫЙ ПОТЕНЦИАЛ ВЫСОКОКВАЛИФИЦИРОВАННЫХ КАДРОВ ДЛЯ ПРОВЕДЕНИЯ ПОИСКОВЫХ И ПРАКТИЧЕСКИХ РАБОТ В РАЗЛИЧНЫХ ОБЛАСТЯХ НАУКИ, ТЕХНИКИ И НАРОДНОГО ХОЗЯЙСТВА СОЦИАЛИСТИЧЕСКИХ СТРАН.

Из Обращения сотрудников Объединенного института ядерных исследований к научным коллективам социалистических стран с призывом развернуть соревнование за высокий уровень фундаментальных исследований и их эффективное использование в смежных областях науки и техники.

СОДЕРЖАНИЕ

Приветственное слово вице-директора ОИЯИ профессора М.Совински	7
Г.Н.Флеров, В.Я.Выропаев Возможные применения методов ядерной физики в науке и технике	9
А.С.Штань Современное состояние и перспективы развития радиационной техники и технологии в СССР	23
В.М.Назаров, Ю.М.Останевич Применение импульсных реакторов периодического действия в исследованиях по физике конденсированных сред и для прикладных задач	47
В.С.Евсеев Исследование электронной структуры вещества и кинетики химических реакций с помощью мезонов	67
Х.Герстембергер, М.Гейслер, Х.Шельхорн Определение следовых концентраций элементов при помощи нейтронного активационного анализа и его применение в народном хозяйстве	75
Н.А.Дамбург, Г.Г.Микельсон, Л.Л.Нелекис, И.Д.Штраус, Д.В.Мурьев Возможности инструментального нейтронно- активационного и рентгенофлуоресцентного методов анализа морских донных образований	92
В.А.Мейер, А.Н.Жуковский, В.С.Пономарев, А.В.Мейер, И.М.Лаптев, А.Д.Соколов Применение полупроводникового Si(Li)- спектрометра с термоэлектрическим охлаждением для многоэлементного анализа горных пород и руд в естественном залегании	96
Б.С.Григоркин, Р.М.Файзуллин, Г.Д.Балашкин Развитие ядерно-физических методов для решения геологических задач на примере геолого-разведочной экспедиции Якутского геологического управления	101
Э.В.Васильева, Г.Ф.Жеронкин, Т.С.Зварова, С.Илиев, Г.М.Осетинский, М.Совински, В.Г.Тишин Элементный анализ на электростатическом генераторе ЭГ-5 Объединенного института ядерных исследований	114
Р.Клабес, У.Крейсиг, Р.Гречель, М.Фельско Микроанализ кислорода в полупроводниковых материалах с помощью ядерных реакций	121

М.Л.Беттгер, Д.Бирнштайн, В.Хелбиг Определение содержания примесей в полупроводниковом кремнии с помощью активационного анализа на заряженных частицах	127
Я.Боганч, Я.Дюлаи, А.Надь, В.М.Назаров, А.Сабо, З.Шереш Использование пучков тепловых нейтронов для изучения распределения атомов бора в материалах	131
И.А.Барит, Б.С.Кудинов, Я.Е.Кузьмин Применение ядерно-физических методов с использованием ускорителя заряженных частиц для анализа поверхностных слоев и тонких пленок	147
Ю.С.Замятнин Ядерные фильтры	153
С.И.Цыпкин Влияние облучения на свойства сверхпроводников	164
Х.Абель Биофизические основы терапии злокачественных новообразований с помощью быстрых нейтронов	183
О.В.Савченко Применение тяжелых заряженных частиц высоких энергий в медицине /обзор/	193
Э.Л.Андроникашвили Применение активационного анализа для изучения микроэлементного состава нормальных и опухолевых нуклеиновых кислот и его корреляция с микроэлементным составом клеточных компонентов и цельных тканей	221
В.Е.Зайчик Радиозотопный рентгенофлуоресцентный метод элементного анализа в клинической медицине	243
И.В.Казачевский, Н.И.Лашкул, В.Н.Левковский, А.Я.Ботвина Определение концентраций макро- и микроэлементов в некоторых биологических объектах методами активационного анализа	247
Е.А.Жербин, А.В.Севаньякаев, Н.В.Лучник, Г.М.Обатуров, З.Г.Тятте Цитогенетическое действие нейтронов разных энергий на лимфоциты периферической крови человека	254
В.Е.Дудкин Тканевые дозы протонов и многозарядных ионов	258

Г.Эрцгребер, И.Копп, Х.Абель Сравнительное исследование роста сфероидов после их облучения гамма-лучами цезия, рентгеновскими лучами, π^- -мезонами, быстрыми нейтронами и тяжелыми ионами	262
В.М.Абазов, Е.П.Череватенко, А.А.Вайсон, В.В.Мещерикова, Т.А.Фадеева, Н.Л.Шмакова Радиобиологические параметры π^- -мезонного пучка ЛЯП ОИЯИ	266
В.П.Джелепов, О.В.Савченко, Е.П.Череватенко, Т.А.Фадеева, Н.Л.Шмакова, С.П.Ярмоненко Предварительные результаты физических и радиобиологических измерений параметров нейтронного пучка от внешней мишени синхроциклотрона ЛЯП ОИЯИ	271
С.П.Капчигашев, Г.М.Обатуров, В.В.Дуба Физико-дозиметрические характеристики источников нейтронов /реактора БР-10, ускорителя КГ-2,5 и нейтронного генератора КГ-150М/	278
О.В.Комова, В.М.Изаров, М.Стойка, Т.А.Фадеева, Н.Л.Шмакова Некоторые физические и радиобиологические характеристики пучков импульсных периодических реакторов на быстрых нейтронах	282
Б.А.Коннов, Д.Л.Карлин, В.Б.Низковолос Применение протонного пучка синхроциклотрона ЛЯФ для лучевой терапии	295
В.А.Халкин Короткоживущие нуклиды для медицинских целей	299
Е.Г.Алексеев, В.М.Зайцев, А.М.Золотов, В.И.Тихонов Получение изотопа ^{123}J в реакциях расщепления при энергии протонов 1 ГэВ и синтез меченных ^{123}J радиофармацевтических препаратов	308
Е.А.Вайнер, Н.П.Громова, А.Ф.Гуськов, Н.В.Куренков, В.И.Левин, А.Б.Малинин, И.Н.Тронова, В.Г.Хрущев Получение ^{155}Tb и ^{167}Tm на ускорителе ЛУЭ-25	311
Я.Миккульски, Т.Петрына Получение и выделение некоторых циклотронных радиоактивных изотопов, используемых в ядерной медицине	315
Ю.В.Заневский Многопроволочные детекторы для медико-биологических исследований	319

Ю.С.Анисимов, Н.Н.Говорун, В.М.Головатюк, Ю.В.Заневский, А.Б.Иванов, И.М.Иванченко, В.А.Крамаренко, П.В.Мойсенз, Л.Моучка, В.Д.Пешехонов, И.Н.Семенюшкин, А.Е.Сеннер, Б.Ситар, И.А.Тяпкин, С.П.Черненко Использование пучка ионов гелия синхрофазотрона ОИЯИ для радиографии	327
Л.Моучка, В.Д.Пешехонов, Б.Ситар, Л.Ситарова Дрейфовая проекционная камера для нейтронной радиографии	331
Н.И.Баландиков, А.Г.Зельдович Обзор работ ОИЯИ по криогенному обеспечению сверхпроводящих устройств	335
Б.Д.Краковский, В.Г.Пронько Разработка основных элементов криогенных систем	347
В.Н.Шкунденков Сканирующий автомат типа АЗЛТ-1 для ядерно-физических и прикладных задач	352
А.А.Карлов, Т.Ф.Смолякова, Г.Б.Щенкова Построение и анализ модели пространственной структуры белка в режиме диалога "человек - ЭВМ"	357
К.Ветцель, Г.Бруннер, К.П.Досталь, Е.Гартманн, Д.Гичнебург, Х.Купш, М.Нагель, Д.Пабст, А.Риго О химически-индуцированной вариации константы распада технеция - 99М	361
Е.Л.Ковальчук, А.А.Поманский, А.А.Смольников, А.Х.Темноев Исследование собственной радиоактивной загрязненности различных естественных и искусственных материалов в подземной низкофоновой камере	369

Приветственное слово вице-директора ОИЯИ
профессора М.Совински

Уважаемые товарищи!

Разрешите от имени дирекции Объединенного института ядерных исследований приветствовать собравшихся в этом зале участников III-го Совещания по использованию ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач.

Перед наукой стран социалистического содружества стоят большие и ответственные задачи, направленные на эффективное использование результатов фундаментальных исследований для решения таких глобальных проблем современности, как охрана окружающей среды, борьба с наиболее опасными заболеваниями, оптимальное расходование природных ресурсов и другие.

Интернациональный коллектив ОИЯИ хорошо понимает эти задачи. Это выразилось в принятом сотрудниками нашего Института обращении к научным коллективам социалистических стран развернуть широкое соревнование за высокий уровень фундаментальных исследований и их эффективное использование в смежных областях науки и техники.

Приятно отметить, что уже третий раз в Дубне обсуждаются вопросы практического применения результатов фундаментальных исследований в области ядерной физики, физических методов, уникальных установок и аппаратуры. Надо сказать, что около половины докладов подготовлены сотрудниками ОИЯИ или при их участии. И это вполне понятно. Наш институт является уникальным научным центром, располагающим разнообразными источниками ядерного излучения. Конечно, в основном эти источники используются для проведения фундаментальных исследований, однако существуют возможности их применения для решения ряда научно-технических и народнохозяйственных задач в странах-участницах ОИЯИ. Что касается дирекции Института, то она содействует и будет впредь содействовать развитию таких прикладных исследований, которые тесно связаны с основными научными направлениями ОИЯИ.

На Совещание представлены обзорные доклады и оригинальные сообщения по вопросам элементного и структурного анализа с использованием всех видов излучений, заряженных частиц и нейтронов

применительно к задачам контроля окружающей среды, материаловедения, геологии, биологии. По сравнению с предыдущим совещанием медико-биологические аспекты использования ядерно-физических методов и пучков частиц расширились настолько, что их пришлось выделить в отдельную секцию. Включены также сообщения по криогенной технике и практическому использованию сверхпроводимости, по системам автоматической обработки информации и использованию пропорциональных и дрейфовых камер в прикладных целях. Как видно, программа совещания весьма актуальна и насыщена. Поэтому позвольте пожелать вам плодотворной работы и выразить уверенность в том, что обмен идеями и новые творческие контакты будут способствовать прогрессу в решении больших задач, стоящих перед наукой наших стран.

ВОЗМОЖНЫЕ ПРИМЕНЕНИЯ МЕТОДОВ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ В НАУКЕ И ТЕХНИКЕ

Г.Н.Флеров, В.Я.Выропаев

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

В 1979 г. исполняется 40 лет со дня открытия деления урана, когда началось целенаправленное освоение атома как источника энергии. На первых порах, как известно, события развивались весьма драматично — лучшие научные умы человечества вынуждены были заняться проблемой использования атомной энергии как мощного оружия. Тем не менее уже через 15 лет в Обнинске дала промышленный ток первая в мире АЭС — наступила эра использования атомной энергии в мирных целях широким фронтом. Фундаментальные исследования в ядерной физике привели к созданию большого числа малых и больших ускорителей, реакторов, к разработке высокочувствительных средств регистрации ядерных процессов (детекторы, ядерная электроника).

Разработанные в экспериментальной физике установки — источники излучений и детекторы различных видов излучений оказались удивительно удобными и перспективными инструментами для целого ряда отраслей науки и техники.

Остановимся на некоторых конкретных примерах. Открытие и создание полупроводниковых детекторов с разрешением в десятки раз лучшим, чем у пропорциональных счетчиков и сцинтилляторов, позволило получать информацию практически обо всех радиоактивных изотопах, образующихся при облучении различных образцов, без привлечения средств радиохимии. В сочетании с разработанными многоканальными анализаторами импульсов это позволило создать методы инструментального активационного анализа практически на все элементы, производимые и потребляемые народным хозяйством. Таким образом, создана основа для широкого внедрения в практику ядерно-физических методов элементного анализа. Однако на сегодня основные источники излучений — атомные реакторы и ускорители расположены в крупных научно-исследовательских центрах. Кроме того, развитие техники детектирования показало, что

нет необходимости для производства массовых анализов иметь мощные источники, какими являются, например, типовые исследовательские реакторы типа ВВР или ИРТ /1/.

После многочисленных исследований и не менее многочисленных бурных дискуссий на региональных, Всесоюзных и Международных конференциях можно сделать ряд выводов о наиболее перспективных, надежных, эффективных и сравнительно недорогих источниках, которые можно использовать повсеместно в народном хозяйстве для организации как аналитической службы, так и производства изотопов (рис.1).

В качестве источника нейтронов достаточно иметь реактор типа ИР на ТВЭЛах /2/ или гомогенный типа $L-88$ /3/ с графитовым замедлителем мощностью не более 100 кВт (против 2000 кВт у реакторов типа ВВР и ИРТ). Такие реакторы способны обеспечить потоки нейтронов порядка $10^{11} - 10^{12}$ н/см²·с, что вполне достаточно для анализа большинства элементов, а наличие графита позволяет вести селективный анализ за счет резонансной активации нужных элементов (рис. 2). Далее, очень эффективным источником является микротрон /4,5/, производящий как нейтроны, так и фотоны. При энергии пучка электронов порядка 25 МэВ и токе 30 микроампер установка обеспечивает выход нейтронов около 10^{13} н/с и поток гамма-квантов порядка 10^{15} фотонов/с, что обеспечивает чувствительность определения таких элементов, как серебро, золото, уран, свинец, таллий и т.д. на уровне 10^{-7} г/г. Установка позволяет оперировать двумя видами излучения. И там, где "не работает" (n, γ) - реакция, как в случае свинца и таллия, отлично получают изотопы по (γ, n) - реакции (рис.3).

Кроме того, оперируя различными сечениями (n, γ)-и (γ, n)-реакций, управляя энергией гамма-квантов и выделяя резонансные нейтроны, можно существенно повысить избирательность, селективность активации, т.е. селективность анализа.

Не следует сбрасывать со счета и рутинные ускорители - циклотроны типа У-120 и У-150, а также выпускаемые сейчас У-100 /6/ типа МЦ для аналитических целей. Эти машины являются также источниками нейтронов ($\sim 10^{12}$ н/с), заряженных частиц для производства ядерных реакций типа (α, xn) и для возбуждения характеристического рентгеновского излучения (ХРИ). Возможности здесь весьма широки: 1) о возможности нейтронной активации

при выходе $\sim 10^{12}$ н/с говорилось выше; 2) реализация ($\alpha, \text{КП}$)-реакций позволяет анализировать такие "трудные" элементы, как висмут, платина, с чувствительностью до 10^{-8} г/г; 3) возбуждение ХРИ в сочетании с кристалльными рентгеновскими спектрометрами, которые имеют разрешение порядка 1 эВ, позволяют проводить весьма высокочувствительный анализ $\frac{1}{7}$.

Наконец, хорошо известно массовое внедрение рентгено-флюоресцентного анализа на изотопах с использованием кремниевых и германиевых детекторов. При чувствительности $10^{-4} - 10^{-5}$ г/г, $\frac{8,9}{9}$ здесь реализуется массовый экспрессный многоэлементный анализ.

Перечисленные выше установки и методы элементного анализа имеют весьма широкие возможности. Однако анализ аналитических задач показывает, что необходим дифференцированный подход к каждой конкретной задаче. Например, не всегда необходима пневмочита при проведении массовых анализов: при активации резонансными нейтронами на микротроне ЛЯР одновременно 15 кг геологических образцов уже через несколько часов получается дозиметрически чистые образцы и массовость анализа определяется количеством детекторов. Далее известно, что современная многоканальная спектрометрическая аппаратура по стоимости сравнима с теми источниками излучений, о которых говорилось выше, т.е. невозможно обеспечить ее каждый детектор. В то же время, применяя современные одноканальные спектрометры, можно решить эту проблему и во много раз повысить качество и количество анализа. Такой анализатор успешно применяется в ЛЯР.

Заканчивая рассмотрение аналитических возможностей ядерной физики, хотелось бы упомянуть о решении некоторых задач государственной важности. Разработанные в свое время нейтронные генераторы оказались весьма эффективным инструментом при поисках, разведке и эксплуатации нефтяных месторождений $\frac{I}{10}$. Используемый широко и повсеместно нейтронный каротаж скважин $\frac{II}{11}$ позволит значительно повысить коэффициент извлечения нефти на каждом конкретном месторождении, что дает экономический эффект в десятки миллионов рублей (рис.4). Создание малофоновых счетчиков для регистрации малых активностей позволило решить ряд уникальных гидрогеологических задач - контроль движения пластовых жидкостей при эксплуатации нефтяных месторождений, контроль создания платин гидроэлектростанций и ирригационных сооружений.

Использование обычных радиоизотопов ограничивалось двумя моментами — необходимостью иметь дело с опасными концентрациями радионуклидов и сорбцией активности на вмещающих породах. Последний недостаток устраняется использованием трития в виде T_2O — воды, а первый — за счет применения малофоновых высокочувствительных счетчиков.

Далее, ядерная физика видимо существенно поможет в решении такой важнейшей проблемы, как предсказание землетрясений. Известно, что землетрясениям (а также извержениям вулканов) предшествуют глубинные процессы в земной коре, приводящие к резкому увеличению выхода в газовую фазу эманации Ra . Времени жизни эманации достаточно, чтобы достичь земной поверхности, и с помощью высокочувствительной аппаратуры легко получить информацию об изменении ее концентрации (рис.5). В сочетании с данными сейсмических станций полученная информация позволяет прогнозировать время, силу и место землетрясений ^{112/}.

Наконец, необходимо остановиться еще на одном из замечательных применений ядерной физики, разработанных в Дубне — это создание и производство ядерных фильтров ^{113/}. В специальных сообщениях об этом будет сказано подробно. Эти фильтры уже сейчас нашли широкое применение для решения важнейших народно-хозяйственных задач: получение чистых сред (вода, воздух) на предприятиях электронной промышленности, выделение бактерий и вирусов в медицине и биологии, в криогенной технике в процессах, связанных с селекцией излучения поверхностей, в методах пробоотбора при контроле окружающей природной среды, в пищевой промышленности и т.д.

Быстрое и весьма широкое внедрение в деятельность человечества столь мощного инструмента научно-технической революции, каким является ядерная физика, поставило перед обществом ряд многогранных проблем, и в рамках данной статьи охватить все грани невозможно. Хотелось бы еще остановиться коротко на таких вопросах, как роль ядерной физики в сфере материального производства, воздействие атомной науки и техники на окружающую природную среду, влияние ядерной физики на человека. Видимо, эти вопросы сегодня наиболее ключевые вообще для всего человечества, во всех сферах его деятельности, и ядерная физика в силу ее специфичности занимает здесь особое место. Мы обязаны этим заниматься.

В сфере производства ядерная физика в настоящее время занимает одно из ведущих мест. Во-первых, создание атомной промышленности вызвало развитие целого ряда новых отраслей промышленности, связанных с производством новых материалов (рис.6). Созданные технологические схемы и операции, будучи перенесены в другие отрасли промышленности, способствовали их передовому оснащению. Во-вторых, из-за истощения мировых запасов топливной энергии (нефть, уголь, газ, сланцы), а также весьма сильного и порой необратимого влияния топливной энергетики на окружающую природную среду атомные электростанции в ближайшее десятилетие станут основными в производстве энергии. В-третьих, хорошо известно, что богатые рудные месторождения металлов, потребляемых обществом, неукоснительно сокращаются. Уже сейчас целый ряд элементов мы добываем из месторождений, где их содержится порядка нескольких грамм на тонну руды. Поэтому встает вопрос о принципиально новой организации аналитической службы в таких сферах, как геология, геохимия, горно-добывающая промышленность. Требуется производить анализы на уровне 10^{-5} - $10^{-7}\%$, и таких анализов требуется делать (рис.7) десятки миллионов в год $/14/$. Мы глубоко убеждены, что эту задачу можно решить только средствами ядерной физики. К тому же известно, что атомная промышленность с самого начала имела исходные рудные материалы малых концентраций, что к реакторным материалам предъявляются требования особой чистоты. И разработанные технологии производства будут с успехом применяться (и уже применяются) в общей технологии.

Наконец, в силу специфики атомной науки и техники, связанной с воздействием источников излучений на окружающую природную среду и человека с самого начала развития атомной промышленности и энергетики были разработаны такие конструктивно-технологические решения, которые позволили атомной промышленности занять первое место по чистоте производства. Вообще вопрос о воздействии производства на природную среду и на человека является сегодня ключевым. Необходимость повышения урожайности сельскохозяйственных культур и животноводства при ограниченных площадях угодий вызвала мощное развитие производства химических синтетических продуктов. Потребность в одежде и обуви также способствовала развитию химической промышленности в целом. Как отмечалось на недавнем конгрессе гене-

тиков в Москве, общество использует сейчас шесть миллионов химических веществ и на человека воздействует около 63 тысяч химикалий (включая 30 тысяч производимых лекарств)^{/15/}.

Далее, наши технологические схемы зачастую работают так, что извлекается ограниченное количество нужных элементов и порой нам неизвестен микроэлементный состав в выбросах в атмосферу и в воду, в отвалах. А подобные отходы, как правило, содержат и вредные, и полезные элементы, и это надо знать.

В итоге, через многочисленные экологические цепочки (производство → выбросы → воздух, вода → растения, животные → человек) человека сегодня буквально атакует огромное количество веществ и элементов. И мы убеждены, что наладить контроль (миллионы анализов), перестроить технологию, создать методы прогнозирования воздействия на природу – все это в значительной степени может взять на себя ядерная физика.

Одной из важных и ответственных областей соприкосновения ядерной физики с человеком является медицина. В 1927 году Г. Д. Меллером была открыта трансмутация генов под действием излучений. В свое время это позволило во много раз поднять выработку антибиотиков (прежде всего, пенициллина), что спасло тысячи человеческих жизней. Однако с развитием атомной науки и техники, с бурным внедрением в широкую практику источников излучений, а сегодня – в связи с освоением космического пространства, встал ряд принципиально новых медико-биологических проблем, связанных прежде всего с охраной здоровья как нынешнего, так и будущих поколений.

Эти же проблемы возникают в связи с развитием новых методов лечения, которые основаны на различном взаимодействии различных излучений (как по характеру частиц – от рентгеновских лучей до тяжелых ионов, так и по их энергии) на здоровые и больные ткани человеческого организма.

Например, ОИЯИ располагает широким диапазоном источников излучений. Их только энергетическое воздействие лежит в интервале порядка 10^{15} условных энергетических единиц (от магнитных полей до заряженных частиц с энергией сотни МэВ). И для того чтобы эти возможности использовать, необходима длительная кропотливая работа как в ядерной физике, так и в области медицинской радиологии.

Вообще говоря, исторически сложились довольно прочные связи между физиками и биологами. Во-первых обмен терминологией - термин "деление" был физиками взят у биологов (деление клеток), а термин "цепные процессы размножения" биологами у физиков, далее - расшифровка структур ДНК и РНК, выполненная в Кавендишской лаборатории физиками, появление новых наук на стыке физики, медицины и биологии (биофизики, медицинской радиологии и др.) и, наконец, выход человека в космос, когда он лишился естественной защиты от космических лучей, - все это позволяет выразить уверенность, что принципиальные биологические, медицинские и экологические проблемы, связанные с использованием излучений, будут успешно решены.

Таковы некоторые проблемы, связанные с применением ядерной физики для решения научно-технических и народно-хозяйственных задач.

Л И Т Е Р А Т У Р А :

1. Гончаров В.В., Николаев Ю.Г., Бабулевич Е.Н., Чернилин Ю.Ф. Экспериментальный реактор бассейнового типа мощностью 2000 кВт (ИРТ).
2-я Международная конференция ООН по мирному использованию атомной энергии. I5(P) 2185, Женева, 1958.
2. А.М.Щетинин, В.Н.Никитин и др. АЭ, том 38, вып.2, 1975, стр.97.
3. S.O.Henric. "Atomic International's L-88 nuclear reactor for neutron radiography". Isotopes and Radiation Techn.9, №1, 1971.
4. С.П.Капица, В.М.Мелехин. Микротрон, М., "Наука", 1969.
5. В.Я.Выропаев. Исследование активации резонансными нейтронами в графитовом замедлителе с использованием фотонейтронов микро-трона. ОИЯИ, I4-9446, Дубна, 1976.
6. Малогасаритный циклотрон МГЦ. НИИЭФА, М403821, 1974.
7. С.Б.Ефимов и др. Некоторые вопросы применения быстрых ионов для элементного анализа вещества. ОИЯИ, ДП4-9779, Дубна, 1976.
8. Мамиконян С.В. Аппаратура и методы флуоресцентного рентгено-радиометрического анализа. М., Атомиздат, 1976.
9. Р.Вольдсет. Прикладная спектрометрия рентгеновского излучения М., Атомиздат, 1977.
10. Флеров Г.Н., Алексеев Ф.А., Ерозолимский Б.Г. Перспективы использования радиоактивных излучений в геологии при поисках и разведке полезных ископаемых. Труды Всесоюзного совещания по применению радиоактивных изотопов, ГТТИ, 1959.
11. Д.Ф.Беспалов, В.В.Миллер, Ю.С.Шимелевич. Импульсные нейтронные методы в геофизике. Вестник АН СССР, № I, 1972.
12. Masayasu Noguchi, Hiroshi Wakita. A Method for Continuous Measurement of Radon in Groundwater for Earthquake Prediction. S.of Geophysical Research, March 10, 1977.
13. Г.Н.Флеров, В.С.Барашенков. Практические применения пучков тяжелых ионов. УЭН, том II4, вып.2, октябрь 1974.
14. Г.Н.Флеров, В.Я.Выропаев. ОИЯИ, I3-8649, Дубна, 1975.
15. "Комсомольская правда" от 31.09.78.

ИСТОЧНИКИ НЕЙТРОНОВ

РЕАКТОРЫ типа ЦРТ, 2000 кв.	100
РЕАКТОР типа L-88, 25 кв.	10
ЛУЗ-20 I _б = 100 мкА	5
ЦИКЛОТРОН типа МЦГ	2
МИКРОТРОН	1
НГ-генератор	0,05
Н-размножитель	0,01
ИЗОТОПЫ	0,005

Рис. I. Источники излучений для активационного анализа (микротрон принят за условную единицу аналитической эффективности).

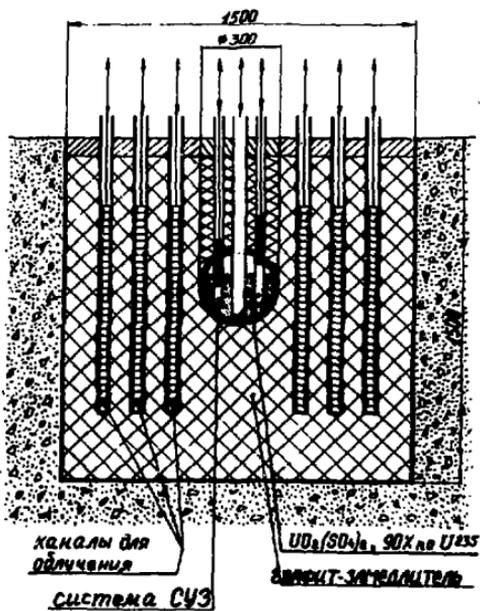


Рис. 2. Схема гомогенного реактора, специализированного для активационного анализа.

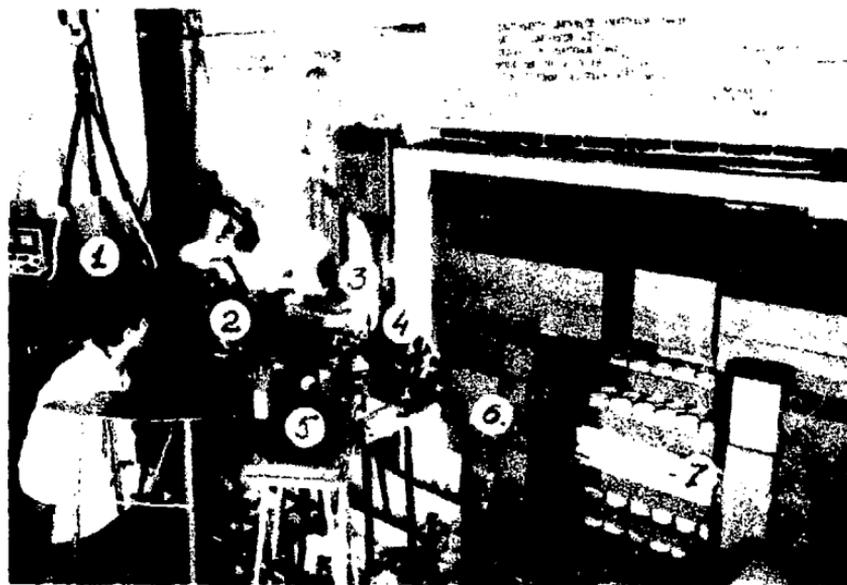


Рис. 3. Микротрон для активационного анализа: 1 - электромагнит микротрона; 2 - выходной канал электронного луча; 3 - поворотный магнит; 4 - фокусирующие линзы; 5 - гамма-активационный канал; 6 - графитовая призма -замедлитель (отражатель) нейтронов; 7 - активационный объем с загрузкой 15 кг образцов.

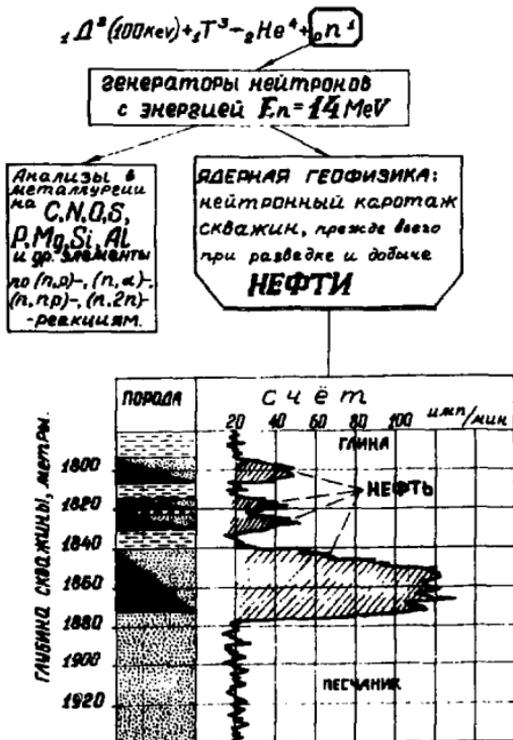


Рис. 4. Нейтронные генераторы в народном хозяйстве.

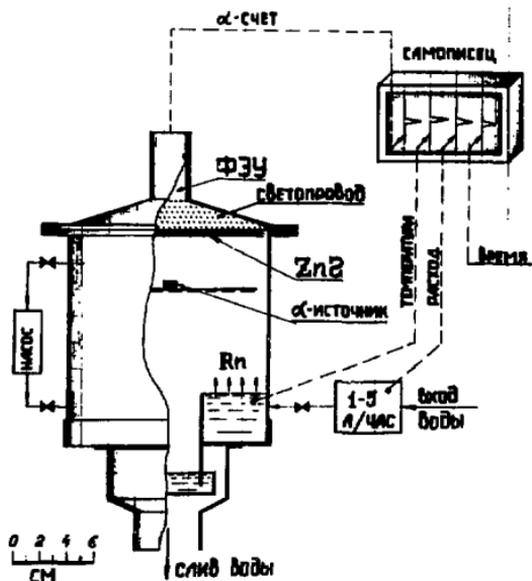


Рис. 5. Установка непрерывного контроля концентрации радона в водах подземных источников.

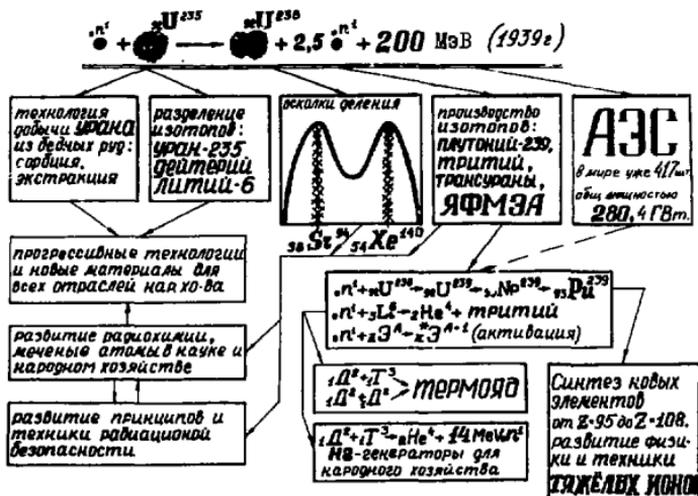


Рис. 6. Развитие атомной науки и техники после открытия деления урана.

Аналитические задачи	количество проб/вод	анализ на элементы	содержание
ГЕОЛОГИЯ, ГЕОХИМИЯ.	15-20 миллионов	Al, Ag, U, Ni, Sn и т.д.	до $10^{-6}\%$
ТЕХНОЛОГИЯ: ГОРНАЯ, МЕТАЛЛУРГИЯ, ХИМИЯ, ЧИСТЫЕ МАТЕРИАЛЫ.	до 20 миллионов	по производству, потреблению, отходам.	от $10^{-2}\%$ до $10^{-8}\%$
КОНТРОЛЬ ОКРУЖ. ПРИРОДНОЙ СРЕДЫ	до 27 миллионов	Hg, Pb, As, Cd, F и т.д.	мкг/л ³
СЕЛЬСКОЕ ХОЗЯЙСТВО: ПОЧВОВЕДЕНИЕ, ЖИВОТНОВОДСТВО.	до 30 миллионов	15-20 элементов	до $10^{-6}\%$
МЕДИЦИНА, БИОЛОГИЯ.	5-7 миллионов	12-15 элементов	до $10^{-8}\%$

ИТОГО ВСЕГО ТРЕБУЕТСЯ ДЕЛАТЬ $\gg 100$ МЛН/ГОД,
ОДНАКО ДЕЛАЕТСЯ < 10 МЛН/ГОД.
В ТОМ ЧИСЛЕ СРЕДСТВАМИ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ
ОКОЛО $0,5$ МЛН/ГОД,
Т.Е. НЕ БОЛЕЕ $0,5\%$

Рис. 7. Потребности некоторых отраслей народного хозяйства в анализах.

СОВРЕМЕННОЕ СОСТОЯНИЕ И ПЕРСПЕКТИВЫ РАЗВИТИЯ РАДИАЦИОННОЙ ТЕХНИКИ И ТЕХНОЛОГИИ В СССР

А. С. Штань

Всесоюзный научно-исследовательский
институт радиационной техники, Москва

Выдающиеся достижения в области ядерной физики, ставшие основой появления и развития атомной энергетики, явились также базой для развития исследований, направленных на совершенствование существующих и разработку новых способов преобразования энергии, вызвали необходимость в создании принципиально новой техники, новых материалов, новых технологических процессов.

Появление возможности промышленного производства больших количеств искусственно-радиоактивных веществ, создание электрофизических источников интенсивных пучков ионизирующих излучений, обусловили становление и развитие нового направления атомной техники — радиационной техники.

Радиационная техника — область новой техники, включающая в себя методы и средства использования ионизирующих излучений от реакторных, изотопных и электрофизических источников для воздействия на материалы и вещества с целью изменения или получения новых свойств, преобразования энергии распада радиоактивных веществ в тепловую и электрическую энергию, получения информации о качественных и количественных параметрах материалов и изделий, контроля и управления технологическими процессами, технической и медицинской диагностики и терапии различных заболеваний человека.

Радиационная техника — область науки и техники, включающая в себя ядерно-физические методы, приборы, аппараты и установки, действие которых основано на использовании эффектов взаимодействия ионизирующего излучения с веществом в настоящее время является мощным средством научно-технического прогресса в различных отраслях промышленности, медицины и сельского хозяйства.

К настоящему времени четко определились три основные составляющие радиационной техники: радиационное аппаратостроение, радиационное приборостроение и радиоизотопная энергетика (табл. I).

Задача радиационного аппаратостроения состоит в создании мощных радиационных установок технологического назначения, а также радиационной терапевтической техники.

Радиационное приборостроение охватывает ту область измерительной техники, где носителем информации является поток ионизирующего излучения, корреляционно связанный с определяемыми характеристиками вещества.

Радиоизотопная энергетика ставит своей целью создание энергетических устройств различного назначения, в которых в качестве первичного источника энергии используется энергия радиоактивного распада радионуклидов.

Радиационная техника является технической базой развития самостоятельных научно-технических дисциплин, таких, например, как радиационная химия, радиационная дефектоскопия, радиационная терапия, радиоактивационный анализ, ядерная геофизика и др.

Все основные направления радиационной техники успешно развиваются в Советском Союзе.

Радиационное аппаратостроение и радиационная технология.

Основой радиационной технологии и радиационного аппаратостроения являются физические, физико-химические и биологические процессы в веществах, происходящие при взаимодействии с ионизирующими излучениями и вызывающие соответствующий технологический или терапевтический эффект.

Развитие работ по исследованию радиационных процессов, разработка на основе этих исследований промышленно-перспективных технологических процессов, а также развитие работ в области радиационного аппаратостроения претерпело несколько стадий.

На I-й стадии проводились качественные исследования, устанавливались основные закономерности взаимодействия ионизирующих излучений с веществом, накапливались данные о качественных изме-

Таблица I



Структурная схема радиационной техники

нениях вещества, проводились исследования на первых экспериментальных радиационных установках.

2-я стадия работ в рассматриваемой области характеризуется детальным изучением количественных закономерностей взаимодействия излучений с веществом.

На основе экспериментальных и опытно-промышленных исследований устанавливались перспективные для промышленной реализации радиационно-технологические процессы, осуществлялась в укрупненных масштабах отработка этих процессов, устанавливались их возможные технико-экономические показатели. На этой стадии появились первые опытно-промышленные радиационные установки (аппараты), отработывались вопросы их оптимизации, проектирования и эксплуатации.

3-я стадия - начало создания промышленной радиационной технологии, промышленного радиационного аппаратаостроения. На этой стадии уже сегодня появляются промышленные радиационно-технологические предприятия, цеха, установки.

Одновременно широким фронтом проводятся исследования, направленные на поиск новых высокоэффективных радиационных процессов, оптимизацию и унификацию радиационных аппаратов, источников излучения.

К настоящему времени разработаны и находятся на различных стадиях опытно-промышленной и промышленной реализации около 50 различных радиационно-технологических процессов, которые можно отнести к следующим основным направлениям:

- 1) радиационно-химический синтез ;
- 2) радиационная полимеризация и графтполимеризация;
- 3) радиационное сшивание и вулканизация;
- 4) радиационная стерилизация материалов и изделий;
- 5) радиационная обработка пищевых и сельскохозяйственных продуктов.

Вышеуказанные направления радиационной технологии получили не одинаково широкое развитие.

Так, например, радиационная стерилизация в настоящее время достигла такого положения, что ее можно считать наиболее высоко-развитой областью радиационной технологии.

Радиационная стерилизация, особенно материалов, обладающих термолабильными свойствами, является быстро развивающейся областью промышленной радиационной технологии, осуществляемой с использованием как изотопных, так и электрофизических источников излучения.

Радиационно-химический синтез надо считать наиболее важным направлением радиационной технологии, позволяющим в ряде случаев существенно интенсифицировать протекание химических процессов, упростить и удешевить получение некоторых видов химической продукции. В некоторых случаях радиационный метод позволяет осуществить синтез таких соединений, которые другими способами получить не представляется возможным.

Наиболее близко к промышленной реализации находятся такие радиационно-химические процессы синтеза, как радиационное сульфохлорирование и сульфокисление парафиновых углеводородов, получение тетрачлоралканов методом радиационной теломеризации этилена с четыреххлористым углеродом, радиационное производство тетрабромсилола, радиационный синтез фторированных спиртов и поликарбоновых кислот, радиационный синтез этилбромида и ряд других.

Промышленное внедрение вышеназванных радиационно-химических процессов, по-видимому, будет стимулироваться прежде всего тем, что эти процессы обеспечивают высокий радиационно-химический выход.

Радиационная полимеризация и графтполимеризация. К настоящему времени определились направления промышленного использования процессов радиационной полимеризации и графтполимеризации, такие, например, как радиационное модифицирование древесины, радиационное отверждение лакокрасочных покрытий, радиационная модификация натуральных и синтетических волокон и тканей.

Серьезный интерес представляют работы по бета-полимерным материалам, которые указывают на перспективность использования процессов радиационной полимеризации и графтполимеризации как на основе применения электрофизических источников излучения для процессов, происходящих в тонких слоях, так и радиоизотопных источников гамма-излучения для осуществления равномерной полимеризации объемных образцов.

Радиационное сшивание и вулканизация. Проводимые в значи-

тельных масштабах опытно-промышленные работы по радиационной вулканизации и сшиванию полимеров при сравнительно невысоких затратах энергии излучения создают уверенные предпосылки достижения в ближайшие годы уровня высокоэффективного промышленного производства. Процессы радиационного сшивания и вулканизации позволяют существенно улучшить эксплуатационные свойства изделий из полимеров, резин, каучуков. Улучшается стойкость при повышенных температурах, повышается механическая и электрическая прочность, стойкость в агрессивных средах и ряд других свойств. Так, например, бессернистая радиационная вулканизация резино-технических изделий повышает их прочность, термо и морозостойкость.

На основе радиационного метода вулканизации каучуков создана технология получения высокотермостойкой самослипающейся изоляционной ленты, с большим успехом применяющейся для изоляции деталей крупногабаритных электромашин, генераторов, тяговых двигателей электровозов и т.п.

Радиационное сшивание полимерной изоляции в кабельных изделиях позволяет существенно повысить температурные нагрузки, а следовательно, и ее эксплуатационные свойства.

Радиационно-технологические аппараты для этих целей строятся как с использованием изотопных, так и электрофизических источников излучения.

Радиационная обработка пищевых и сельскохозяйственных продуктов. Возможность использования ионизирующей радиации, как показывают многочисленные экспериментальные и крупномасштабные опытные работы, для целей сохранения различных видов пищевых продуктов и сельскохозяйственного сырья к настоящему времени научно обоснована и практически доказана.

Для многих видов продуктов установлены оптимальные режимы радиационной обработки, проведены многолетние исследования их пригодности и безвредности использования.

В большом числе стран мира компетентными органами многие виды радиационно-обработанных продуктов разрешены для употребления в пищу.

Радиационно-технологическое аппаратостроение. Современное состояние радиационно-технологического аппаратостроения можно характеризовать завершением разработки основ инженерно-физического расчета и конструирования, изложенных в ряде монографий и справочников. Определелись критерии рационального выбора источников излучения и формы облучателя. Отработаны методы конструирования систем перемещения источников излучения, автоматики, контроля и защиты, а также устройств для перемещения объектов, подвергающихся радиационной обработке.

Разработанные методы расчета и конструирования облучателей и в целом радиационно-технологических аппаратов, позволяют достичь высоких значений коэффициента использования излучения и высоких коэффициентов полезного действия всего комплекса радиационно-технологического оборудования.

В качестве источников излучения большое распространение получили изотопные источники на основе нуклида кобальта-60, реже применяется цезий-137. Широкое применение в качестве источников излучения нашли ускорители электронов различного типа (таб.2).

Методы расчета и конструирования проверены на экспериментальных, опытно-промышленных и первых промышленных образцах радиационно-технологических аппаратов.

Дальнейшее развитие работ в этой области направлено на создание специализированной промышленной аппаратуры, повышение ее технологических и технико-экономических показателей, надёжности и удобства в эксплуатации.

Радиационно-терапевтическое аппаратостроение. В течение последнего десятилетия сформировались основополагающие принципы аппаратурного оснащения лучевой терапии, отвечающие современным высоким требованиям радиологии.

Главный из этих принципов – переход от оснащения отдельных лечебных процедур к комплексному аппаратурному оснащению всего процесса лучевой терапии, открывающему перспективу объединения в единую систему средств топической диагностики, выработки оптимальной программы облучения и её четкой реализации.

К настоящему времени завершены исследования источников из-

Таблица 2

Некоторые примеры
разработанных и внедренных в СССР
методов и средств радиационной обработки

Наименование	Назначение	Тип источника	Год внедрения
РС-2,5	Опытно-промышленный радиационный сульфохлоратор для получения продукта, используемого в производстве моющих веществ.	Кобальт-60	1967
ГУП-50	Универсальная гамма-установка для панорамного облучения	Кобальт-60	1975
РХОТ	Опытно-промышленная установка для радиационно-химической обработки тканей с целью получения антимикробных свойств.	Ускоритель "Электрон-3"	1975
РВ-1200	Радиационно-технологическая установка для вулканизации термостойкой самослипающейся электроизоляционной ленты и резиностеклоткани.	Кобальт-60	1971
ПРБД-300	Гамма-установка для полимеризации мономеров в древесине и бетоне с целью увеличения прочности и герметичности	Кобальт-60	1977
РУСМИ	Промышленная установка для стерилизации медицинских изделий с ускорителем электронов, обеспечивающая гарантированную стерильность.	Ускоритель ЛУЭ-8/5В	1976
1С-1000	Промышленные установки для стерилизации медицинских изделий	Кобальт-60	1976
1УС-10	Гамма-установка для обработки черенков лозы винограда с целью увеличения процента прививки	Кобальт-60	1978

4000 010 101 511 50 1102-11 8 9 10

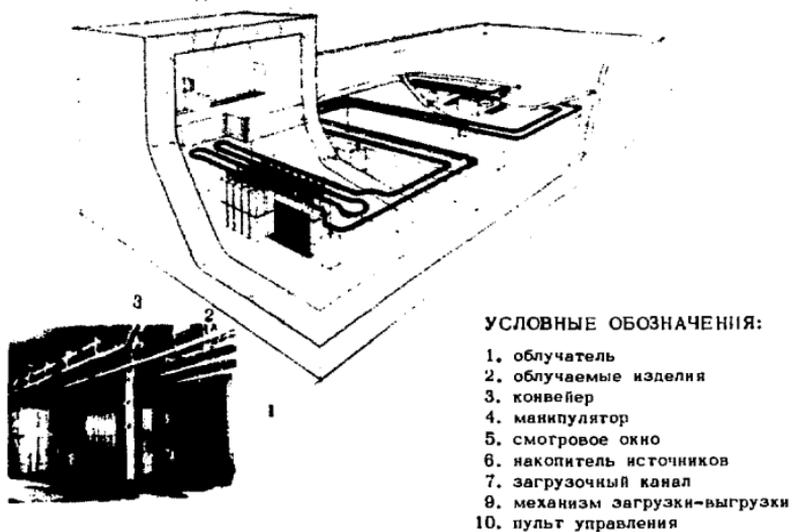


Рис. I. Установка для радиационной стерилизации медицинских изделий "Стерилизация-Ш".

лучения и устройств для формирования дозных полей облучения, средств радиационной защиты и штативных устройств, являющихся главными элементами гамма-терапевтической аппаратуры. На основе этих исследований разработаны методы оптимизации и обоснования их физических, конструкторско-технологических и эксплуатационных параметров.

В основу создания комплекса серийных аппаратов для гамма-терапии был заложен принцип агрегатированной системы, согласно которому на базе унифицированных узлов и блоков формируются аппараты конкретного назначения.

Так, дальнедистанционные статический и ротационный гамма-терапевтические аппараты формируются из унифицированных радиационных головок, регулируемых диафрагм, процедурных столов и др. элементов, а всё многообразие внутриполостных аппаратов базируется на двух унифицированных транспортерах источников излучения (пневматическом и троссовом) и специализированных эндостатах.

Современное состояние этой области радиационной техники характеризуется разработкой, освоением в серийном производстве и широким внедрением в клиническую практику комплекса радиационно-терапевтической аппаратуры, базирующегося на современных мощных статических и ротационных аппаратах типа АГАТ-С и АГАТ-Р.

В СССР практически создано новое направление в радиационно-терапевтическом аппаратостроении — разработаны и серийно производятся внутриполостные гамма-терапевтические аппараты, обеспечивающие успешное решение задач контактной лучевой терапии в онкогинекологии и проктологии.

Практическое внедрение и длительная эксплуатация этой аппаратуры в ведущих медицинских научно-исследовательских институтах и клиниках подтвердили перспективность нового направления.

Автоматизация терапевтической радиационной техники в последние годы приобретает все большую актуальность, особенно в связи с усложнением программ облучения. Ведутся интенсивные поиски и уже созданы некоторые из средств топометрических исследований, такие как рентгено-телевизионный симулятор и трансмиссионный томографический скеннер, способные выдавать информацию о форме и расположении патологического очага не только визуально, но и в закодированном виде для ввода ее в ЭЕМ с целью выработки наибо-

лее приемлемой программы облучения и последующей ее автоматической реализации.

Этим обуславливается перспективность и актуальность ведущихся в настоящее время разработок гамма-терапевтических аппаратов с программным управлением, которые должны обеспечивать высокую точность позиционирования, синхронность согласованных движений подвижных частей, стабильность скоростей перемещения и широкий диапазон их изменения (табл.3).

Радиационное гриборостроение

Прогресс в области автоматизации контроля и управления производственными процессами в значительной степени зависит от создания новых средств получения информации о величинах, характеризующих протекание этих процессов. Среди таких средств, появившихся в последние два десятилетия, значительное место занимает радиационные контрольно-измерительные приборы.

Носителем информации (радиационным сигналом) в этом случае является наличие (отсутствие) изменения величины потока ионизирующего излучения, значение которого корреляционно связано с параметрами, характеризующими протекание технологического процесса, такими как элементный состав вещества, влажность, плотность, расход, уровень, толщина, давление и т.п.

$$P = f(F)$$

где: P - контролируемый параметр технологического процесса;
 F - величина потока ионизирующего излучения;
 f - функция корреляционной связи контролируемого параметра технологического процесса и величины потока ионизирующего излучения.

Существуют десятки механизмов взаимодействия ионизирующих излучений с веществом. Выбирая вид излучения, его энергию в зависимости от свойств контролируемого вещества, можно обеспечить доминирующее значение того механизма взаимодействия, который в наибольшей степени обеспечивает получение требуемой информации.

Благодаря высокой проникающей способности ионизирующих из-

Таблица 3

Гамма-терапевтические аппараты, разработанные
и серийно выпускаемые в СССР

Тип аппарата	Наименование	Назначение, краткая техническая характеристика
Аппараты для дистанционного облучения	АГАТ-С	Статическое облучение ^{60}Co -4000 Ки
	АГАТ-Р	Ротационное и статическое облучение ^{60}Co -4000 Ки
Аппараты для контактного облучения	АГАТ-В	Шланговый внутриполостной для гинекологии ^{60}Co -1,05 Ки
	АГАТ-В I	Внутриполостной для гинекологии и проктологии ^{60}Co - 2,25 Ки
	АГАТ-В 2	Внутриполостной для стоматологии ^{60}Co - 4,5 Ки
	АГАТ-В 3	Универсальный внутриполостной для гинекологии, проктологии, стоматологии. ^{60}Co - 6,75 Ки

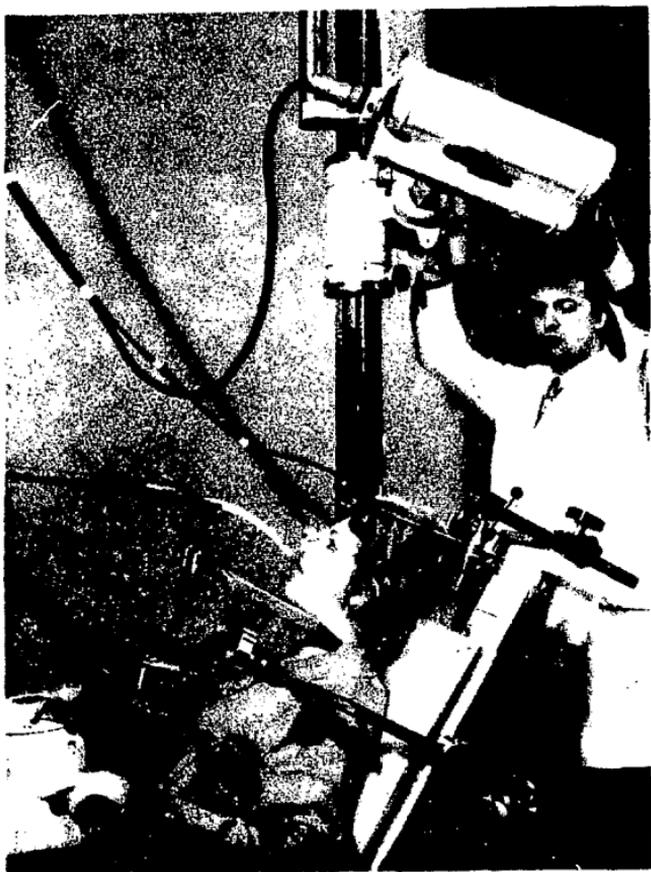


Рис. 2. Внутриполостной гамма-терапевтический аппарат АГАТ-В2.

лучений, в особенности γ -квантов и нейтронов, можно переносить информацию в виде радиационного сигнала через стенки технологических аппаратов, трубопроводов, емкостей и т.п. Это позволяет обеспечить бесконтактные измерения радиационным методом параметров технологических процессов, протекающих при высоких температурах и давлениях в высокоагрессивных средах и т.п., то есть там, где применение измерительных устройств других типов невозможно или менее эффективно.

У нас в стране значительное развитие получили методы и средства активационного анализа.

Активационный анализ успешно применяется в промышленности, при поисках полезных ископаемых, в космохимии, биологии, медицине, для изучения загрязненности окружающей среды, в криминалистике и т.д.

Многие аналитические центры и крупные промышленные предприятия и институты в СССР оснащены аппаратурой многоэлементного активационного анализа, на которой решается комплекс аналитических задач, проводятся методические исследования.

В ряде случаев для целей массового анализа продуктов в промышленных условиях достаточно определение 1-3 элементов. Для этих целей разработаны специализированные автоматические установки активационного анализа. С помощью таких установок имеется возможность в течение нескольких минут определять концентрацию (от 10^{-4} до 100%) одного или нескольких элементов с погрешностью 1-10%. Большое распространение получили установки для определения концентрации кислорода, азота, кремния, алюминия и др. элементов в металлах методом активации быстрыми нейтронами. На большинстве советских предприятий титановой промышленности, например для анализа титана на содержание кислорода, используются активационные измерительные установки, разработанные во ВНИИ радиационной техники.

Для многоэлементного анализа состава вещества с использованием реакций на быстрых нейтронах создана установка МА-1, где все операции по проведению анализа и обработке результатов проводятся с использованием ЭВМ.

Для использования в установках активационного анализа в

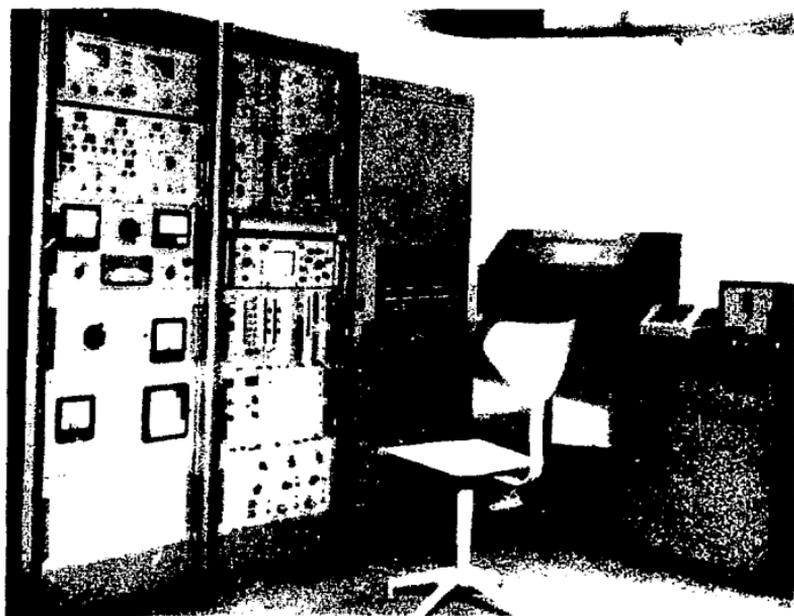


Рис. 3. Установка для активационного анализа МА-1 с вычислительной машиной.

СССР создан ряд генераторов нейтронов как с непрерывной откачкой, так и с использованием запаянных нейтронных трубок.

Наиболее высокую чувствительность анализа можно получить при использовании ядерного реактора в качестве источника нейтронов. Специально для целей активационного анализа разработан ядерный реактор РГ-ПМ, который установлен на Норильском горно-металлургическом комбинате. В лаборатории активационного анализа этого комбината как инструментальными методами, так и с применением радиохимического выделения производится определение благородных редких и цветных металлов с содержанием до $10^{-7}\%$.

Дальнейшим развитием методов технологического контроля является анализ состава вещества в потоке. Для непрерывных технологических процессов в промышленности такие методы представляют значительный интерес. В настоящее время мы можем констатировать

факт создания научно-технических основ непрерывных активационных методов анализа состава вещества. Исследованы основные закономерности этих методов, разработан ряд методик анализа в потоке.

На базе этих исследований создано несколько вариантов аппаратуры для активационного анализа состава вещества в потоке, а также приборы для нейтронно-абсорбционного анализа, в том числе аппаратура для контроля содержания выгорающих добавок в теплоносителях АЭС.

Наряду с нейтронным активационным анализом всё более широкое применение получает гамма-активационный анализ. Этот метод обладает высокой избирательностью, чувствительностью, высокой точностью и экспрессностью. Наиболее удобными источниками γ -излучения для осуществления гамма-активационного анализа являются линейные ускорители и микротроны (табл. 4)

Электронные ускорители позволяют получать интенсивные потоки не только жесткого тормозного рентгеновского излучения, но и достаточно мощные нейтронные потоки. Так, например, ускоритель ЛУЭ-15 с бериллиевым конвертором позволяет получить поток нейтронов до $n \cdot 10^{13}$ нейтрон/с. Это существенно расширяет круг аналитических задач, которые могут быть решены с помощью электронных ускорителей за счет применения нейтронного активационного анализа в комплексе с гамма-активационным.

Таблица 4

Ускорители электронов, применяемые
в активационном анализе

Название ускорителя	Тип ускорителя	Энергия ускоренных электронов (МэВ)	Средняя мощность в пучке (кВт)	Ток электронного пучка на мишенях (мкА)	Интенсивность тормозного излучения (Р/млн.м)
ЛУЭ-8	Линейный	8,0	5-7	700	14000
ЛУЭ-15	Линейный	15,0	7-10	500	55000
МТ-20	Микротрон	20,0	0,5-1,0	30-50	8000

Рентгенорадиометрический метод анализа вещества по своей физической сущности близок к классическому рентгеноспектральному анализу и отличается от него тем, что в качестве источника первичного излучения используется не рентгеновская трубка, а радиоактивный нуклид.

Простота, малые габариты и стоимость в сочетании с достаточной для многих практических задач чувствительностью рентгенорадиометрического метода обуславливают широкие возможности его использования для массового экспресс-анализа технологических или геологических проб, анализа пород и руд в естественном залегании, автоматического контроля технологических сред в потоке. Все эти направления получили достаточно полное развитие в Советском Союзе. Разработана целая гамма приборов различного назначения. Характеристики некоторых из них приведены в таблице 5.

Важным направлением работ в области рентгенорадиометрии является переход в область анализа более легких элементов.

Обширный круг производственных технологических параметров позволяют измерять радиационные контрольно-измерительные приборы. Наиболее распространены радиационные плотномеры, уровнемеры, толщиномеры, влагомеры, а также релейные приборы.

Эти приборы применяются для измерения плотности пульпы в стальных трубах с суммарной толщиной стенок до 30 мм, определения плотности измерение уровня агрессивных, сыпучих, пенящихся, кристаллизующихся и выпадающих в осадок веществ, уровня границы раздела жидких сред, измерения толщины листовых и ленточных материалов, толщины покрытий и т.д.

Радиационные методы измерения влажности и плотности почв и грунтов по сравнению с термо- и объемно-весовыми методами позволяют уменьшить затраты времени и труда в 5-10 раз. Поэтому на КамАЗе, БАМе и других стройках эффективно используются радиационные глубинные влагомеры РВГ-36 и плотномеры РПП-36.

Широкий круг задач решается в промышленности с помощью радиационных релейных приборов. Так, например, восемьдесят высокочувствительных спцинтилляционных радиоизотопных релейных приборов типа РРПС-1, включенных в систему автоматики одной из крупнейших

Таблица 5

Характеристика некоторых отечественных
рентгенорадиометрических приборов

Прибор	Назначение	Принцип действия	П а р а м е т р		
			Диапазон концентрации %	Погрешность определения %	Время измерения, мин.
АКР-1	Экспресс-анализ элементов группы Fe в порошковых пробах	Флуоресцентный с компенсацией эффекта матрицы по β -рассеянию	1-70	0;5	1-2
ФРАД-1	Экспресс-анализ элементов с $20 \leq Z \leq 92$ в порошковых пробах	Флуоресцентный с автостабилизацией (два канала)	0,5-100	0,1+0,005	3
КРН-1	Контроль концентрации Та и Nb в растворах в потоке	Абсорбционный по скачку поглощения	0,1-20г/л	0,05г/л+1% -	
МАЯК-В	Экспресс-анализ элементов с $11 \leq Z \leq 24$	Флуоресцентный с вакуумной камерой	10-1 (порог обнаружения)	5-10 (относ.)	2-10
РПС-4-01	Экспресс-анализ минерального сырья в естественном залегании	Флуоресцентный с дифференциальными фильтрами	10 ⁻² (порог обнаружения)	5 (относ.)	1
ФРАМ-1	Одновременный анализ многокомпонентных проб на несколько (до 6) элементов с $20 \leq Z \leq 92$.	Флуоресцентный с полупроводниковым детектором	0,01-100	0,002-0,3	1 (1-элементное определение).



Рис. 4. Установка для рентгенорадиометрического анализа ФРАМ-1 со встроенной ЭВМ.

в мире доменной печи на Криворожском металлургическом комбинате, позволяют надежно определять уровень засыпки бункеров системы шихтоподачи, исключают переполнение бункерных воронок.

Мощным средством повышения эффективности технологии производства и качества выпускаемых деталей и конструкций стала радиационная дефектоскопия. Радиационные дефектоскопы позволяют проводить неразрушающий контроль качества сварных соединений, литья, поковок и готовых сторон толщиной (по стали) до 200 мм. С помощью используемых в этих аппаратах источников γ - и нейтронного излучений контролируются изделия сложной формы, объекты, расположенные в труднодоступных местах, детали и узлы в процессе их изготовления, сварные швы магистральных трубопроводов,

твэлъ и топливные сборки ядерных реакторов, энергетическое оборудование, в том числе на АЭС.

Созданы специальные острофокусные источники на основе иридия-192, обеспечивающие проведение контроля на малых фокусных расстояниях. Для контроля тонкостенных изделий исследована возможность использования источников низкоэнергетического излучения на основе радионуклидов ^{147}Pm , ^{204}Tl , ^{55}Fe , ^{90}Sr , ^{241}Am и др.

Новым направлением в радиационной дефектоскопии является применение пространственно кодированных источников ионизирующего излучения. Это позволяет получать трехмерную информацию о контролируемом изделии. Положено начало разработке газосорбционных методов контроля для обнаружения дефектов в поверхностном слое изделий.

В СССР разработан и освоен в серийном производстве целый ряд гамма-дефектоскопических аппаратов.

Проведен большой цикл исследований по применению нейтронов для неразрушающего контроля параметров материалов и готовых изделий. В результате этих исследований были выявлены основные закономерности, определяющие возможности, условия и особенности применения нейтронов для указанных целей, решены многие задачи, связанные с практическим применением этого метода. Метод позволяет получать информацию о параметрах изделий, расположенных за экранами из более тяжелых материалов, выявлять



Рис. 5. Гамма-дефектоскопические аппараты серии "Гаммарид".

выключения водородосодержащих соединений, веществ с большим сечением поглощения нейтронов и т.п. Проводятся работы по созданию технических средств нейтронной радиографии на основе мощных изотопных источников нейтронов из калифорния-252, а также с помощью пучков нейтронов, выводимых из ядерного реактора.

Радиоизотопная энергетика

Радиоизотопные источники тепловой и электрической энергии обычно состоят из источника тепла, содержащего ампулы с радиоактивным веществом, преобразователя тепловой энергии в электрическую, устройства для передачи тепловой энергии потребителю и радиатора для отвода неиспользованной тепловой энергии в окружающее пространство. Преобразование тепловой энергии в электрическую осуществляется преимущественно с помощью термоэлектрических преобразователей, а также термоэмиссионных и динамических систем преобразования.

Существуют методы прямого преобразования энергии радиоактивного распада в электрическую: в высоковольтных атомных батареях разность потенциалов на электродах создается за счет непосредственного сбора заряженных частиц, в другом типе радиационных энергетических установок под воздействием облучения в полупроводниковом материале генерируются носители тока, которые затем разделяются электрическим полем р-п-перехода.

Радиоизотопная энергетика находится на стыке нескольких наук (ядерной физики и радиохимии, теплофизики и электротехники, физики твердого тела). За сравнительно короткий срок в СССР был выполнен целый комплекс работ, в частности по изысканию наиболее эффективных способов получения радиоизотопного топлива, технологии изготовления радиоизотопных источников тепла, отвечающих требованиям радиационной безопасности. Разработаны принципы конструирования и математического моделирования взаимосвязанных ядерно-физических, теплофизических и электрических процессов в целях оптимизации параметров радиоизотопных источников энергии.

В качестве основного вида топлива для многих типов термоэлектрических генераторов широкое применение нашел нуклид стронций-90, а для высокоэнергоемких установок - плутоний-238 (для объектов с длительным сроком службы).

Области применения радиоизотопных энергетических установок (РЭУ), разработанных в СССР.

Таблица 6

Область применения	Назначение и тип РЭУ	Электрическая мощность (Вт)	Срок службы (годы)
Гидрометеослужба	Питание автоматических метеорологических станций в труднодоступных и необжитых районах СССР (Бета-С, Бета-М).	8-12	более 10
Навигация	Питание морских радиомаяков с дальностью действия до 200 миль, световых маяков, светящихся знаков в различных климатических зонах СССР, в том числе на трассе Северного морского пути (Эфир-М).	30	до 5
Геоматнитная служба	Электропитание и термостатирование магнитных вариационных станций в Антарктиде (Пянгвин).	2	-
Космические исследования	Обогрев аппаратуры космических аппаратов "Луноход-1", "Луноход-2".	-	Практическая длительность работы 6-10мес.
Медицина	Питание электрокардиостимуляторов ("Ритм").	мВт + мВт	около 10

Проведенный комплекс работ дал возможность осуществить промышленное производство радиоизотопных источников тепловой и электрической энергии, которые находят широкое применение в различных областях науки и техники (табл.6)

В частности, в СССР работает свыше 200 автоматических радиометеорологических станций с радиоизотопными источниками питания типа "Бета-С" и "Бета-М".

Вышеприведенный краткий обзор состояния и перспектив развития радиационной техники и технологии показывает, что это сравнительно новое направление оформилось в крупную самостоятельную отрасль атомной науки и техники, без которой сегодня немислим дальнейший технический прогресс в различных областях промышленности, научных исследований, медицины, сельского хозяйства.

Литература

1. Атомная наука и техника в СССР. М., Атомиздат, 1977.
2. Карташев Е.Р., Штань А.С. Нейтронные методы непрерывного анализа состава вещества. М., Атомиздат, 1978.
3. Козлов К.Д., Никулин К.И., Титков И.С. Расчет параметров и конструирование радиационно-химических установок с ускорителями электронов. Под ред. А.Х.Брегера. М., Атомиздат, 1976 .
4. Радиоизотопная дефектоскопия (Методы и аппаратура). Авт. Майоров А.Н., Мамиконян С.В., Косарев Л.И., Фирстов В.И. М., Атомиздат, 1976.
5. Радиоизотопные источники электрической энергии. Авт. Кодяков В.И., Рагозинский А.И., Пустовалов А.А. и др. Под ред. Г.И.Фрадкина. М., Атомиздат, 1978.
6. Расчет и конструирование радиоизотопных радиационно-химических установок. Справочник. Под ред. Е.Е.Кулиша, М., Атомиздат, 1975.
7. Тухъяков Н.Д., Штань А.С. основы нейтронной радиографии. М., Атомиздат, 1975.
8. Штань А.С., Карташев Е.Р. Развитие радиационной техники и

технологии в СССР. - Атомная энергия , 1977. т.43, вып.5, с. 390-401.

9. Штань А.С. Перспективы применения гамма-активационного и рентгенорадиометрического методов анализа при поисках и разведке полезных ископаемых. - В кн. Nuclear Techniques in Geophysics and Geochemistry. Proceedings of a Panel, Vienna, 25-29 Nov., 1974, Vienna, 1975, p.129-138.

ПРИМЕНЕНИЕ ИМПУЛЬСНЫХ РЕАКТОРОВ ПЕРИОДИЧЕСКОГО ДЕЙСТВИЯ В
ИССЛЕДОВАНИЯХ ПО ФИЗИКЕ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД И РЕШЕНИИ
ПРИКЛАДНЫХ ЗАДАЧ

В.М.Назаров, Ю.М.Останевич

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Лаборатория нейтронной физики ОИЯИ располагает импульсным реактором периодического действия (типа ИБР) с 1960 года ^{/1/}. За прошедшее время накоплен большой опыт, показывающий эффективность этого типа источника нейтронов для решения целого ряда научных задач в области физики конденсированных сред. Опыт работы с первым импульсным реактором, имеющим в настоящее время среднюю тепловую мощность до 25 кВт, послужил основой для создания нового мощного импульсного реактора ИБР-2 ^{/2/} со средней мощностью до 4 МВт. Этот реактор вступает в число действующих в 1979 году. В связи с этим мы попытаемся осветить как уже имеющийся опыт применения импульсного реактора, так и перспективы, открывающиеся на реакторе ИБР-2.

Остановимся кратко на основных характеристиках импульсного реактора. В отличие от стационарных реакторов, в которых производство нейтронов непрерывно, в реакторах типа ИБР нейтроны генерируются короткими периодическими импульсами. Важнейшими характеристиками при этом становятся длительность импульса, частота повторения и импульсная мощность, развиваемая реактором. Типичные значения этих величин даются в табл. I.

Другой важной характеристикой импульсного реактора является величина нейтронного потока, доступного для пользователя (табл. 2).

Таблица 1.

Реактор, средняя мощность	Длительность импульса	Частота повторения	Импульсная мощность
ИБР-1 (1960) $W = 1$ кВт	50 мкс	5 имп/с	15 МВт
ИБР-30 (1969) $W = 25$ кВт	70 мкс	4 имп/с	100 МВт
ИБР-2 (1979) $W = 4000$ кВт	130 мкс	5 имп/с	8600 МВт

Таблица 2.

Величина потока нейтронов на импульсных реакторах.

Тип реактора	Средний поток нейтронов в 4π	Поток тепловых нейтронов с поверхности замедлителя средний	Поток тепловых нейтронов замедлителя импульсный
ИБР-30	$1,3 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$	$5 \cdot 10^{10} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$	$10^{14} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$
ИБР-2	$1,7 \cdot 10^{17} \text{ с}^{-1}$	$5,8 \cdot 10^{12} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$	$10^{16} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$

Потоки тепловых и быстрых нейтронов с поверхности замедлителя примерно совпадают. Из этих данных видно, что импульсные характеристики ИБР-30 близки к характеристикам современных исследовательских реакторов средней мощности, а характеристики реактора ИБР-2 являются рекордными.

Несколько слов необходимо сказать и о методе использования импульсного реактора, так как от него существенно зависит эффективность использования выгодных качеств этого типа источника нейтронов. Основным методическим приемом, обеспечивающим эффективное применение импульсного источника нейтронов, является спектроскопия по методу времени пролета. Так как тепловые нейтроны обладают скоростями порядка 2000 м/с, пролет нейтроном заранее известного расстояния (L) занимает значительное время (T), легко поддающееся измерению. С помощью элементарного соотношения $V = L/T$ по измеренному времени без труда можно восстановить скорость нейтрона и его энергию. Если изучаемый объект находится на достаточном расстоянии от импульсного реактора, то в каждый данный момент времени на него падают нейтроны с

известной скоростью. Таким образом, монохроматизация нейтронов достигается за счет импульсного характера источника нейтронов, без каких-либо специальных устройств и без дополнительных потерь, связанных с их применением.

Следует заметить, что хотя сам метод времени пролета является весьма древним, только в последние годы широкое общественное мнение осознало выгодность создания импульсных источников тепловых нейтронов и применения на них различных спектрометрических методов, базирующихся на измерении времени пролета. В настоящий момент в Англии, США, Японии и в других странах ведется интенсивная работа по созданию нейтронных исследовательских центров, базирующихся на импульсных источниках нейтронов.

Переходя к обзору применений импульсного реактора в смежных областях науки и для прикладных исследований, мы должны определить хотя бы ту область, от которой мы отмежевываемся. По-видимому, такой областью является физика атомного ядра и элементарных частиц. Хотя и в этих направлениях на импульсном реакторе успешно ведутся очень интересные и результативные исследования, рассказ о них не входит в тематические рамки данной конференции. Довольно очевидно, что остающиеся области науки образуют огромное количество направлений, в которых с помощью нейтронов либо уже ведутся исследования, либо будут вестись в недалеком будущем. Выдающееся и традиционное место среди них занимают исследования по физике конденсированных сред (кристаллов, жидкостей, магнетиков, полимеров, биологических макромолекул и т. д.).

В силу многообразия областей применения, более разумно выделить те основные свойства вещества, которые могут быть исследованы с помощью нейтронов. Эти свойства оказываются однозначным образом связаны с немногочисленными типами взаимодействия нейтронов с изучаемым объектом. Для каждого из них при этом можно указать как уже известные применения, так и провести экстраполяцию в другие области, содержащие родственные задачи. Нейтрон взаимодействует с исследуемым объектом двумя основными способами: либо с атомным ядром с помощью ядерных сил, либо с магнитными полями и их источниками (магнитными моментами электронов, орбитальными токами и др.) с помощью электромагнитных сил, воздействующих на магнитный момент нейтрона. Соответственно, мы в состоянии изучать свойства вещества, отражающиеся в поведении атомных ядер,

либо магнитные свойства, либо их сочетание. Основным методом исследования использует рассеяние нейтронов, поэтому для краткости обычно говорят о ядерном и магнитном рассеянии. Если энергия нейтрона в процессе рассеяния не меняется, мы имеем упругое рассеяние. В обратном случае рассеяние является неупругим, рассеивающий объект перешел в другое состояние, а разность между энергиями нейтрона до и после рассеяния, очевидно, равна разности между энергиями конечного и начального состояний рассеивателя. Наконец, если рассеяние происходит на отдельном рассеивающем центре, мы вправе говорить о некогерентном рассеянии, если на всех – о когерентном. На диаграмме (рис. I) представлена классификация типов рассеяния нейтронов и приведены основные физические свойства вещества, исследуемые с их помощью.

Мы можем заключить, что рассеяние нейтронов – процесс весьма разнообразный, соответственно позволяющий получать много различной информации об изучаемом объекте.

I. Структурные исследования

Хорошо известно, что медленные нейтроны являются ценным, а часто единственным инструментом для изучения структуры конденсированных сред. Среди факторов, определяющих преимущества нейтронов, можно выделить следующие:

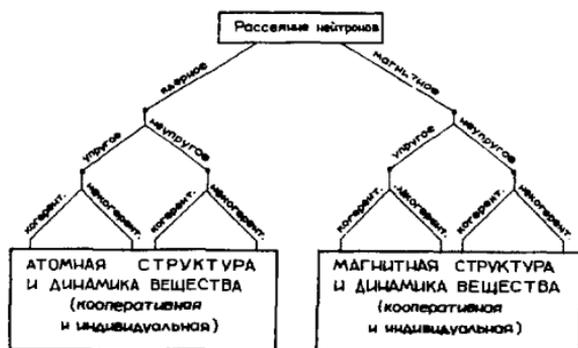


Рис. I. Виды рассеяния нейтронов в конденсированных средах.

- 1) Возможность точного определения координат легких атомов, в основном водорода и дейтерия.
- 2) Возможность отличать соседние элементы.
- 3) Возможность вариации амплитуды рассеяния нейтронов путем изотопного замещения.
- 4) Существенно меньший фактор поглощения по сравнению с рентгеновыми лучами и электронами.
- 5) Уникальная возможность прямых исследований магнитных структур, факторов магнитных электронов и орбитальных токов.

Классические направления, в которых ведутся нейтронографические структурные исследования, хорошо известны. Среди них следует упомянуть структурные исследования неорганических и органических материалов с целью точного определения координат водорода, исследования структуры магнетиков (ферро-, ферри- и антиферромагнетиков), исследование структуры важных в прикладном отношении материалов — гидридов металлов и твердых электролитов, играющих большую роль в качестве аккумуляторов энергии. Упомянем и о направлениях, развившихся в последние годы.

Нейтронная топография ^{/3/}, основанная на чувствительности магнитного рассеяния к ориентации магнитного момента, позволяет визуализировать магнитные домены, причем для антиферромагнетиков визуализация доменов осуществлена впервые.

Сравнительно недавно начались прямые исследования пространственного распределения валентных электронов в химических соединениях, основанные на совместном использовании прецизионных методов нейтронографии и рентгенографии ^{/4/}.

Сравнительно новым и весьма информативным направлением стало применение дифракции нейтронов в биологии. Здесь следует упомянуть два методических подхода. Дифракция нейтронов на биологических монокристаллах ^{/5/} доказала возможность локализации атомов водорода, ответственных за ход ферментативных процессов.

Малоугловое диффузное рассеяние нейтронов в растворах биологических макромолекул стало широко известным методом изучения геометрических характеристик и структуры макромолекул, белковых комплексов, вирусов, мембран и т.д. ^{/5,6/}. Во всех этих исследованиях существенную роль играет управляемое замещение водорода на дейтерий либо в растворителе, либо в изучаемом объекте.

Эта же техника с большим успехом используется для исследования свойств синтетических полимеров в растворах и в плотном полимере /7/, распадающихся металлических систем /8/, сверхпроводников /9/ и других объектов.

Среди прикладных применений этого метода следует назвать контроль (не разрушающий) за состоянием лопастей паровых турбин, которые под действием большой центробежной нагрузки при высокой температуре накапливают значительное количество мелких дефектов и полостей, обнаруживаемых с помощью нейтронов задолго до разрушения лопастей. Фирма ФИАТ в Италии пользуется этим методом для проверки состояния лопастей при каждом ремонте турбин.

Прогресс нейтронной экспериментальной техники в последние годы настолько велик, что уже обсуждаются пути создания нейтронного микроскопа /10/.

Перейдем теперь к обсуждению тех аспектов структурных исследований, которыми импульсный реактор отличается от стационарного. Таких аспектов по крайней мере два. Первый связан с применением техники измерения времени пролета, столь естественной для импульсного реактора. Оказывается, что разрешающая способность метода времени пролета существенно лучше, чем традиционного метода сканирования по углу рассеяния, причем, в отличие от последнего, с ростом межплоскостного расстояния d относительная разрешающая способность улучшается. Путем простых вычислений из соотношения Брегга

$$2d \sin \theta = \lambda \quad (1)$$

для относительной погрешности $\Delta^2 d / d^2$ можно получить выражение:

$$\frac{\Delta^2 d}{d^2} = \frac{\Delta^2 \lambda}{4d^2 \sin^2 \theta} + (\sin^2 \theta - 1) \Delta^2 \theta = \quad (2a)$$

$$= \Delta^2 \lambda / \lambda^2 + (4d^2 \lambda^{-2} - 1) \Delta^2 \theta, \quad (2b)$$

где Δ^2 - мера неопределенности соответствующей величины. Для метода времени пролета $\Delta^2 \lambda$ - постоянно, фиксирован и угол θ , и из (2a) непосредственно видно, что с ростом d правая часть уменьшается. Выражение (2b) адаптировано для стационарного метода исследования дифракции (переменное θ), и видно, что второе слагаемое растет пропорционально λ^2 . Из этих рассуждений немедленно следует предпочтительность импульсного источника для исследований сложных кристаллов с большими элементарными ячейками. В качестве иллюстрации приведены результаты исследований дифракции нейтронов в дидейтерофосфате калия /11/

(рис.2) и в двойном лантан-магниево м нитрате /I2/ (рис.3). В первом из них (рис.2), благодаря высокому разрешению, удалось уверенно разделить отражения, принадлежащие различным сегнетоэлектрическим доменам, что открывает возможности для исследования доменной структуры этих практически важных материалов.

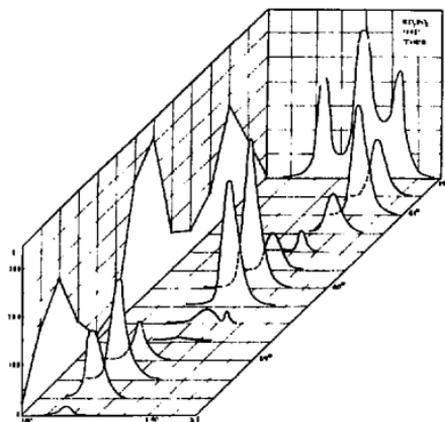


Рис. 2. Дифракция нейтронов в *KDP*.

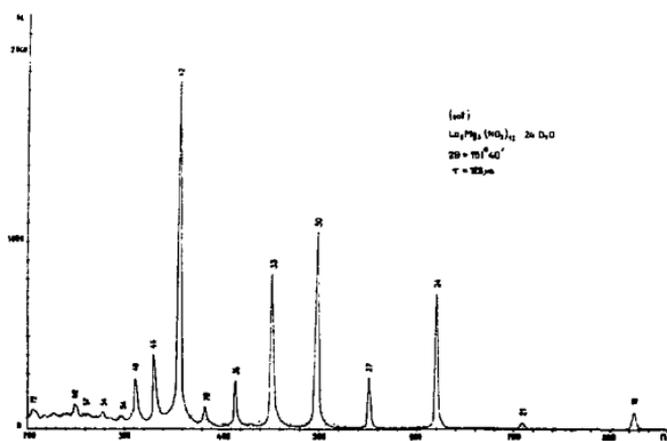


Рис. 3. Дифракция нейтронов в *LMN*.

Рис.3, кроме того, демонстрирует еще одну выгодную особенность метода времени пролета – возможность одновременного наблюдения большого числа порядков отражений от исследуемого кристалла.

Мы полагаем, что структурные исследования на реакторе ИБР-2 вполне удастся развить до уровня, необходимого для кристаллографических исследований белков /13/, текстуры в поликристаллических материалах и электронной плотности в умеренно сложных химических соединениях.

Другой, специфической для импульсного реактора, область исследований структуры является изучение материалов в экстремальных и необычных условиях. Потребность в таких исследованиях, по-видимому, постоянно возрастает как для различных технологических проблем, так и, например, для исследования геологических процессов, а также для пополнения наших знаний о фазовом равновесии. Помимо известных преимуществ метода времени пролета (всего два окна в камере образца) импульсный реактор создает ряд новых возможностей, вытекающих из экстремально высокого импульсного потока нейтронов. К их числу относятся возможности исследования переходных процессов, возникающих в импульсных полях: электрических, магнитных /14/, под импульсным давлением, исследование материалов, облучаемых лазерным импульсом /15/, и т.д. Доступный при этом интервал времени – от нескольких микросекунд до десятков миллисекунд – пока недостижим для других типов нейтронных источников.

II. Исследования динамики конденсированных сред

Если энергия нейтронов при рассеянии изменилась, изменилась и энергия рассеивателя, и мы получаем информацию о его внутренних степенях свободы. Внутренние степени свободы конденсированных сред обычно описываются на языке квазичастиц, рождаемых или уничтожаемых нейтроном. Для описания динамики атомов наиболее употребительными являются фононы (акустические и оптические), для вращательной динамики молекулярных групп – либроны, для магнитных спиновых волн – магноны, для квантовых жидкостей – ротоны и т.д. Типичный диапазон исследуемых энергий квазичастиц – от 0,15 до 0,0005 эВ, диапазон передаваемых импульсов – от 0 до нескольких Å^{-1} . Достижения в этой области хорошо известны.

Область, специфичная для импульсных реакторов — это область больших возбуждений, с передаваемыми энергиями свыше 0,15 эВ и передаваемым импульсом в несколько десятков \AA^{-1} . На рис.4 показана дисперсионная кривая для одночастичных возбуждений в жидком гелии ^{/16/}. По ряду причин импульсный реактор обладает весьма большой интенсивностью в надтепловой области нейтронов, и исследования этого рода будут расширяться по мере развития как экспериментальной техники, так и понимания физических задач в этой мало изучаемой области.

Наибольшего успеха в области умеренных энергий ($\Gamma + 150$ мэВ) на импульсном реакторе достигли исследования бездисперсионных возбуждений. К их числу относятся исследования в области молекулярной динамики водородсодержащих кристаллов. На рис.5 показан спектр неупругого некогерентного рассеяния нейтронов от кристалла нафталина ^{/17/}, в котором видно множество пиков, соответствующих возбуждению степеней свободы кристалла.

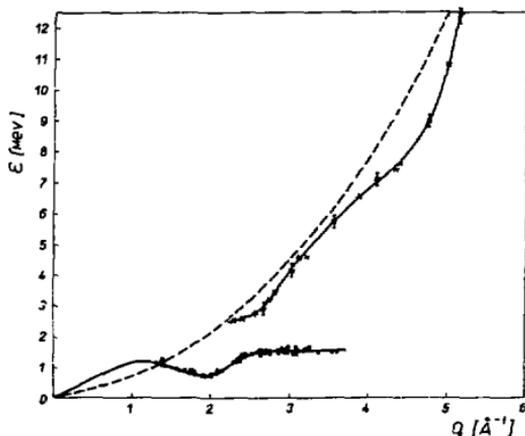


Рис. 4. Дисперсионная кривая элементарных возбуждений в сверхтекучем гелии.

Другое, характерное для импульсного реактора направление, — исследование структуры электронных уровней парамагнитных атомов ^{/18/} в неметаллах и, в особенности, в металлах и сплавах редких земель. В этой области нейтронные исследования пока являются основным источником информации. На рис.6 показан наблюдае-

лий спектр неупругого парамагнитного рассеяния, а на рис.7 - схема уровней в сплаве P_2Ni_5 /18/.

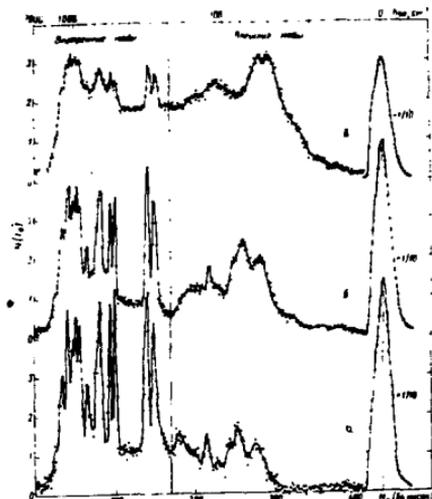


Рис. 5. Неупругое рассеяние нейтронов в нафталине.

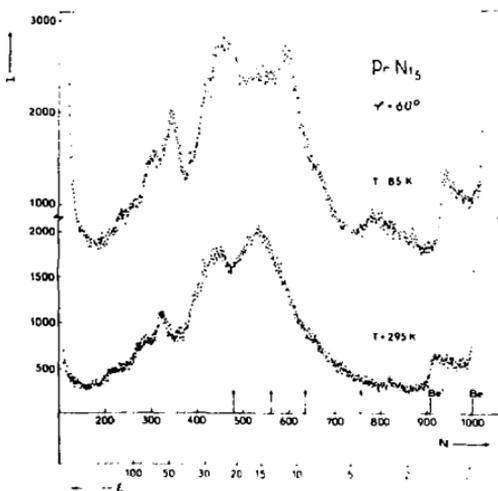


Рис. 6. Наблюдаемый спектр неупругого рассеяния в сплаве P_2Ni_5 .

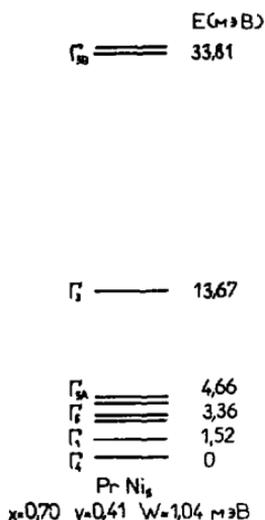


Рис. 7. Схема электронных уровней иона Pr^{3+} в Pr Ni_5 .

С освоением реактора ИБР-2, помимо существенного улучшения разрешающей способности и светосилы для этих исследований, откроются возможности для исследования динамики уже упоминавшихся неравновесных состояний, создаваемых импульсным возбуждением с помощью лазера ¹⁹/ или другими внешними воздействиями.

Среди неожиданных направлений, открывающихся с освоением мощного импульсного реактора, следует назвать возможности прямой накачки лазеров с помощью рекордно высоких нейтронных потоков и создание гамма-лазера ²⁰/ . Первая из них уже имеет некоторое экспериментальное обоснование, полученное на реакторе "TRIGA". Анализ, проделанный Н. Кроо ²⁰/ , показывает, что мощный импульсный реактор сегодня является единственным реальным устройством, позволяющим говорить о путях создания гамма-лазера.

III. Радиационные повреждения

Радиационные повреждения материалов, создаваемые высокоэнергетическими продуктами ядерных реакций, всегда находились в центре интересов ядерной технологии. Этот интерес привел как к

созданию важного самостоятельного направления в материаловедении, так и к пониманию фундаментальных свойств дефектов в твердых телах. Основные вопросы, для которых применение быстрых нейтронов является представляет интерес /21/, можно объединить в три раздела: А) фундаментальные процессы, связанные с нейтронным облучением; Б) сложные явления, связанные с нейтронным облучением; В) исследование радиационных повреждений с помощью нейтронов. Их удобно представить в виде таблиц.

Таблица 3 А.

фундаментальные процессы, связанные с нейтронным облучением:

-
1. Механизмы упругого и неупругого рассеяния, ядерных реакций; замедление нейтронов; распределение вторичных частиц по энергии.
 2. Образование дефектов (вакансий, атомов в междоузлиях, кластеров, электронных дефектов).
 3. Каскадные явления (зоны обеднения и последовательности столкновений с замещением).
 4. Физические свойства дефектов (энергии образования и миграции, электрические свойства и т.д.).
 5. Взаимодействия дефектов (энергии связи).
 6. Всплески температуры и давления.
 7. Радиационный отжиг.
 8. Продукты ядерных реакций и их поведение.
 9. Взаимодействие дефектов с примесями атомами и продуктами ядерных реакций.
 10. Поверхностные явления (распыление).
-

Таблица 3 Б.

Сложные явления, связанные с нейтронным облучением.

-
1. Сложные дефекты, возникающие при высоких интегральных дозах при низких и высоких температурах (дислокационные петли и т.д.).
 2. Перераспределение растворенных атомов.
 3. Устойчивость фаз.
 4. Изменение механических свойств материалов при облучении (прочность, пластичность, ползучесть, усталость, ломкость и т.д.).
 5. Сложные поверхностные явления (образование поверхностных раковин и вздутий).
-

Таблица 3 В.

Исследование радиационных повреждений с помощью нейтронов.

- 1). Исследование атомной конфигурации в дефектах с помощью диффузного рассеяния нейтронов.
- 2). Исследование колебательных состояний, связанных с дефектами (точечные дефекты, кластеры).
- 3). Исследование размеров и формы крупных дефектов (кластеров, полостей и т.д.).

Большие усилия, затраченные на изучение радиационных повреждений, создаваемых быстрыми электронами, привели к пониманию свойств элементарных дефектов (вакансий, атомов в междузлиях) и их взаимодействий в различных конфигурациях. Основная проблема современного радиационного материаловедения состоит в понимании каскадов дефектов, возникающих при облучении быстрыми нейтронами. Это означает, что необходимо исследовать размеры, плотность и конфигурации этих дефектов в зависимости от энергии и температуры в каскадах смещения. Для получения этой информации потребуется множество методов исследования облученных образцов, использующих электроны, рентгеновы лучи, тепловые нейтроны, исследования изменений размеров, механических и электрических свойств и т.д. Почти все эти методы требуют наличия транспортирующей техники для переноса образца от места облучения к месту исследования.

Реактор ИБР-2 для нейтронной части этих исследований представляет значительный интерес. Он оборудован тремя системами пневмотранспорта (ϕ образца 14 мм, длина 40 мм), заканчивающимися соответственно в активной зоне реактора (канал I), в отражателе и в замедлителе (каналы II и III). Облученные образцы можно вернуть либо в горячие камеры, либо доставить непосредственно к физическим установкам для исследования на выведенных пучках.

Средние и импульсные потоки нейтронов в каналах для облучения образцов приведены в таблице 4.

Стационарные реакторы на тепловых нейтронах обеспечивают потоки быстрых нейтронов $10^{13} - 10^{14}$ н.см⁻².с⁻¹, реакторы на быстрых нейтронах - до $2 \cdot 10^{15}$ н.см⁻².с⁻¹ (реактор EBR-II, США). ИБР-2 по среднему потоку занимает промежуточное место, что уже позволяет решать большой круг задач из таблицы 3 В.

Таблица 4.

Поток $n \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Канал, средняя энергия нейтронов		
	I; $\bar{E} = 2 \text{ МэВ}$	II; $\bar{E} = 1 \text{ МэВ}$	III; тепловые
Средний	$3,5 \cdot 10^{14}$	$3 \cdot 10^{13}$	10^{14}
Импульсный	$7 \cdot 10^{17}$	$6 \cdot 10^{16}$	$2 \cdot 10^{17}$

По импульсным значениям потока ИЭР-2 превосходит большинство существующих источников нейтронов, что позволяет исследовать новый круг задач, связанных с мгновенным воздействием исключительно высоких нейтронных потоков в условиях, допускающих их многократное повторение.

Среди проблем, подлежащих изучению, здесь можно назвать:

- исследование эффектов, связанных со скоростью нанесения радиационного повреждения;
- явлений насыщения радиационных повреждений;
- открывается возможность для исследования кинетики радиационных повреждений в области $10^{-4} + 10^{-1}$ с, что представляет интерес для изучения релаксационных процессов с соответствующим временем релаксации.

IV. Элементный анализ и другие приложения

Применение нейтронов для определения химического состава вещества является одной из наиболее старых областей прикладного применения нейтронов. Достаточно упомянуть классический активационный анализ, в котором химический состав определяется по долгоживущим продуктам ядерных реакций, вызванных тепловыми нейтронами. Мы остановимся на активационном анализе с помощью быстрых нейтронов и элементном анализе на чистых пучках тепловых нейтронов, а также обсудим возможности этих направлений для импульсных реакторов.

Для реакторов характерны существенно более высокие потоки быстрых нейтронов, чем для других источников. С другой стороны, сечения основных реакций (n, p ; n, n' ; $n, 2n$; n, α) для нейтронов, испускаемых при делении ядер, в 10-100 раз меньше, чем для нейтронов с энергией 14,0 МэВ, испускаемых при реакции $D - T$.

Тем не менее выигрыш за счет потока преобладает, и фактор качества $\Phi_B \Sigma^*$ (см. табл. 5) для реактора оказывается в 10-100 раз больше, чем, например, для $\mathcal{D} - T$ -генератора. Вместе с тем в стационарных реакторах спектр нейтронов оказывается заметно смягченным, что приводит к фону от реакций с тепловыми и надтепловыми нейтронами. Оказывается, импульсный реактор на быстрых нейтронах практически свободен от этого недостатка (см. табл. 5) и представляет широкие возможности для анализа в практически чистых полях быстрых нейтронов при светосиле, примерно в 100 раз большей, чем на современных $\mathcal{D} - T$ -генераторах или циклотронах.

Таблица 5.

Тип источника	Мощность источника	Φ_B , н·см ⁻² ·с ⁻¹	$\Phi_B \Sigma_{n,p} \Phi_B$ ·10 ⁻¹⁰	Φ_B / Φ_B	Φ_{HT} / Φ_B	Литература
ИБР-2	4 МВт	$3,5 \cdot 10^{14}$	60	10^{-7}	10^{-4}	2
<i>HFR ILL</i> Гренобль	57 МВт	$3,0 \cdot 10^{14}$	50	3,3	0,25	22
$\mathcal{D} - T$ -генератор Базель	Ток дейтонов 250 мА	$5 \cdot 10^{10}$	0,5	0	0	23,24

Φ_B - поток тепловых нейтронов, Φ_{HT} - поток надтепловых нейтронов.

Создание в последние годы интенсивных чистых пучков тепловых нейтронов с помощью техники изогнутых зеркальных нейтронотводов способствовало развитию элементного анализа по реакции (n, γ) непосредственно на нейтронном пучке. Эта схема анализа позволяет:

- 1) исключить влияние времени жизни активного изотопа на продолжительность экспозиции;
- 2) использовать для анализа все изотопы определяемого элемента;

*) Φ_B - поток быстрых нейтронов; Σ - макроскопическое сечение реакции (n, p) в см⁻¹; в табл. 5 использовано значение $1,71 \cdot 10^{-3}$ см⁻¹.

3) определять элементы, недоступные для активационного анализа из-за того, что продуктом реакции является стабильное ядро.

При типичном потоке нейтронов 10^{10} н.см⁻².с⁻¹ анализ по захвату гамма-луча оказывается эквивалентным активационному анализу в потоке 10^{13} н.см⁻².с⁻¹. В таблице 6 приведены данные о чувствительности ($n - \gamma$) анализа для ряда элементов ^{135/}.

Таблица 6.

Элемент	Минимально определяемое количество, в граммах
<i>B, Cd, Sm, Eu, Ga</i>	10^{-5}
<i>In, Dy, Er, Lu, Hg</i>	10^{-6}
<i>H, Ce, Sc, Co, Ho, Tl, Au, Rh</i>	10^{-7}
<i>Ti, Mn, Fe, Ni, Cu</i>	10^{-6}

данные относятся к следующим условиям: поток нейтронов *) на образце $1,5 \cdot 10^{10}$ н.см⁻².с⁻¹; детектор $Ge(Li), V=25$ см³; расстояние от образца до поверхности детектора 20 см; продолжительность экспозиции 20 минут; диапазон энергий гамма-квантов, используемых для анализа, 0,1 - 1,5 МэВ. Следует обратить внимание на высокую чувствительность для элементов *H, B, Cd* и ряда других, не определяемых или плохо определяемых методами обычного активационного анализа.

Основной методической трудностью для анализа по захвату гамма-лучам являются жесткие требования к уровню фона гамма-лучей низких энергий. Основными источниками фона являются:

1) активация конструкционных материалов нейтроновоеда, защиты и самого исследуемого образца;

*) ^{135/} поток определен как $\int_0^{\infty} \phi(\lambda) (\lambda/\lambda) (2200 \text{ м/с}) d\lambda$.

- 2) гамма-кванты, рождаемые неупругим рассеянием быстрых нейтронов в защите реактора и экспериментальных каналов;
- 3) реакция (n, γ) в конструктивных элементах и в защите.

На импульсных реакторах первые два источника фона можно существенно (в 10-100 раз) подавить, применяя метод времени пролета. На стационарном реакторе этого же эффекта можно добиться за счет модуляции нейтронного пучка механическим прерывателем. В таких условиях удавалось надежно определять 10^{-10} ppm ^{10}B с помощью кристалла $\text{NaJ}(\text{Te})$ /26/. На реакторе ИФР-30 в пучке со средним потоком тепловых нейтронов $10^{10} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ даже без изогнутого зеркального нейтронвода нижняя граница определения ^{10}B составила $10 \pm 0,5$ нкт или 10^{-10} ppm в водородосодержащей матрице /27/.

Другим отличительным свойством (n, γ) -анализа в чистом пучке является на 3 - 4 порядка меньшая радиационная нагрузка, чем при обычном активационном анализе. Это обстоятельство, вместе с высокой чувствительностью, позволило сформулировать ряд новых областей применения нейтрона захватного элементного анализа, а именно:

1. Элементный анализ *in vivo* в биологии и медицине /28/.
2. Анализ ценных и уникальных объектов: минералов, метеоритов, археологических предметов и произведений искусства.
3. Изучение физико-химических процессов с участием водорода (сорбция и десорбция малых количеств воды и углеводов) /29/.
4. Определение состава материалов на разных этапах технологического процесса /29/.
5. Отбор семян для селекции растений с большим содержанием белка /30/. В этой области существенно, что радиационная нагрузка оказывается существенно ниже границы возникновения радиационных мутаций.

Ещё одним приложением тепловых нейтронов в последние годы стало изучение распределения примесных атомов ^{10}B в приповерхностных слоях материалов /26, 31-34/. Метод исследования использует известную реакцию $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ и основан на измерении потерь энергии α -частицей или ядром отдачи ^7Li до выхода из исследуемого образца. Метод содержит ряд сложных математических преобразований, которые обсуждаются в указанных работах.

Разрешающая способность метода по глубине составляет $100 - 300 \text{ \AA}$.

На рис. 6 приведены полученные в работе [27] распределения атомов бора, внедренных в кремний и танталатом ионов ^{10}B и BF_2^+ . На пучке ИВР-2 с использованием зеркального нейтронного волновода и среднем потоком $5 \cdot 10^9 \text{ н.см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ этим методом можно будет изучать также распределение и других примесей (Li , N , He), используя соответствующие реакции с вылетом заряженных частиц.

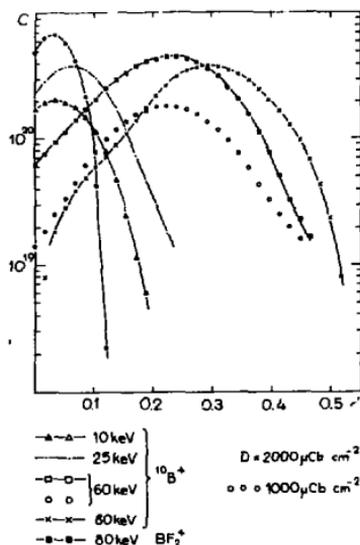


Рис. 6. Наблюдаемые распределения атомов бора по глубине в кремнии. C - концентрация [см^{-3}], α - глубина в $\mu\text{км}$.

По сравнению с другими методами измерения профиля распределения примесей описанный метод

- 1) позволяет определять концентрацию всех, а не только электрически активных, примесных атомов;
- 2) дает возможность изучать на одном и том же образце влияние ряда технологических операций на изучаемое распределение.

Мы не затрагивали большое количество других прикладных направлений - радиографию, радиобиологию, нейтронную диагностику и терапию, радиационную химию и т.д. Отчасти они не специ-

фичны для импульсного реактора, отчасти мы слишком мало знаем о соответствующих физико-химических явлениях и их разработка — дело будущего. Однако из приведенных примеров ясно, что импульсные реакторы являются многоцелевыми базовыми установками, позволяющими решать очень широкий круг научных и прикладных задач, причем ряд из них можно решить только с помощью импульсного реактора.

Литература

1. И.М.Франк, ЭЧАЯ, 2, 807 (1972).
2. В.Д.Ананьев и др. ПТЭ, № 5, стр. 17 (1977).
3. J.Varuchel, M.Schlenker, W.L.Roth. J.Appl.Phys.48,5(1977).
4. Р.П.Озеров, В.Г.Цирельсон, в сб. "V Международная школа по нейтронной физике, Алшшта, 19-30 апреля 1978 г.", стр.22 ОИЯИ, ДЗ-11787, Дубна (1978).
5. В.Р.Schoenborn. in "Neutron Scattering for Analysis of Biological Structures", Brookhaven Symposia in Biology", No.27, p.1-10 (1975).
6. В.Jacrot. Rep.Progr.in Phys. 39, 911 (1976).
7. J.White. Proceedings Conf.on Neutron Scattering, Gattlinburg, Tenn. (5-12 Oct.,1977),vol.1, p.261.
8. V.Gerold a.o. J.Appl.Cryst. 10, 28 (1977).
9. D.K.Christen a.o. Phys.Rev. В,v.15,4506 (1977).
10. И.М.Франк, "Природа", 1972 г., № 9, стр. 24.
11. А.М.Балагуров и др. ОИЯИ Р14-11811, Дубна (1978).
12. А.М.Балагуров и др. Кристаллография, 22, 718 (1977).
13. А.М.Балагуров и др. ОИЯИ, Б1-3-9011 (1975), Дубна.
14. В.В.Нитц. ОИЯИ, 3-5372, Дубна (1970).
А.Бомбик, В.В.Нитц, А.А.Яковлев. ОИЯИ Р13-10070, Дубна(1976).
Г.Госултович, В.В.Нитц, А.А.Яковлев, С.Яроцкий. ОИЯИ, Р14-11558, Дубна (1978).
15. В.Л.Броуде, В.Ф.Шека, в сб. "III Международная школа по нейтронной физике. Алшшта, 19-30 апреля 1978 г.", стр.50, ОИЯИ, ДЗ-11787, Дубна, (1978).
16. К.А.Козлов и др. ОИЯИ, Р3-7519, Дубна (1973).
17. В.Ф.Шека, в сб. "IV Международная школа по нейтронной физике. Алшшта, 2-19 апреля 1974 г.", стр.464. ОИЯИ, ДЗ-7991 (1974).
18. Э.Л.Бохенков, И.Натканец, В.Ф.Шека, ЖЭТФ, 70, 1028 (1977).

19. А.Андреев и др. ОИЯИ, Р14-11324 (1978).
20. Ч.Кроо, в об. "Г.Международная школа по нейтронной физике. Алунта, 11-30 апреля 1978 г.", стр.103. ОИЯИ, 13-11787, Дубна (1978).
21. Neutron Research on Condensed Matter : A Study of the Facilities and Scientific Opportunities in the United States. Ed.National Academy of Sciences, Washington D.C., (1977).
22. E.Moll.Conf.on Nuclear Structure Study with Neutrons, Budapest, 1972.
23. K.A.Schmidt, Second Symp.on Neutron Dosim.in Biology and Medicine, 1974.
24. Neutron Generator for Cancer Therapy, Prospekt Haefely, Basel, 1976.
25. R.Henkemann, H.-J.Born. Conference Internationale sur les Tendances Modernes de L'analyse par Activation, 1974.
26. P.H Heintz, e.a. Intern.J.of Appl.Rad.and Isotopes, 1968, v.19, p.15-22.
27. Боганч А. и др. Доклад на настоящем совещании.
28. D.Comar e.a. Biomedical Applications (1969) p.114-127.
29. J.A.Lubkowitz e.a. Proceedings of an Advisory Group Meeting on Applied Nuclear Physics, IAEA, Vienna, 1978.
30. L.Andras, G.Balint, A.Csoko, A.Z.Nagy. Selektion of Single Grain Seeds by $^{14}\text{N}/n$, ^{15}N Nuclear Reaction for Protein Improvement. KFKI-1978-38, Budapest.
31. B.W.Garbrah, J.E.Whitey. Anal.Chem., 1967, 39/3/345.
32. D.Comar, e.a. Nuclear Applications 6 (1969) 344.
33. J.Kvitek, e.a. Radiochem. Radioan.Lett., 1976, 24/3/205.
34. A.Z.Nagy, e.a. J.of Radioisotope Chemistry, v.38(1977) 19-27.

ИССЛЕДОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННОЙ СТРУКТУРЫ ВЕЩЕСТВА И КИНЕТИКИ ХИМИЧЕСКИХ РЕАКЦИЙ С ПОМОЩЬЮ МЕЗОНОВ

В.С. Евсеев

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Уже более 15 лет существует новое научное направление, возникшее на базе экспериментальных исследований, впервые выполненных на мезонных пучках синхротронного ускорителя ЛЯП, и связанное с использованием легких мезонов для решения проблем самых различных научных дисциплин.

Применение мезонов для исследования электронной структуры вещества и кинетики и механизма химических реакций основано, как на непосредственном магнитном взаимодействии замедлившегося мезона с веществом, так и на явлении образования мезонами при их замедлении и остановке в среде различного рода связанных систем. Само образование этих атомоподобных систем и их взаимодействие со средой существенным образом зависят от целого ряда микроскопических и макроскопических свойств среды. Поэтому, измеряя различные параметры, обусловленные наличием мезонов в искусственных атомоподобных системах, можно следить за поведением этих систем в среде. Если учесть, что эти атомоподобные системы в химическом смысле практически подобны обычным атомам, открываются весьма широкие и заманчивые возможности моделирования поведения обычных атомов с помощью систем, содержащих мезоны.

Положительно заряженный мюон после его замедления в диэлектриках до энергии в десятки и сотни электронвольт "отбирает" у одного из атомов (или молекул) среды электрон и образует на время жизни мюона (около 2 мкс) водородоподобный атом, названный мюонием (химический символ Mu). Поскольку мюоны в пучке поляризованы вдоль направления движения и часть поляризации сохраняется при образовании Mu , мы имеем сверхлегкий, радиоактивный поляризованный изотоп водорода. Измеряя поляризацию мюона в Mu , можно (после выделения поправки, связанной с различием в массах Mu и H) исследовать кинетику и механизм химических реакций водородного

радикала. Используя поляризационные явления в *Ми*, можно изучать большое разнообразие процессов, происходящих в окружающей *Ми* среде и влияющих на поляризацию мюона.

Если не обсуждать здесь возможности мюониевого метода, а ограничить себя лишь примерами того, как с помощью *Ми* решаются конкретные задачи, то станет ясным, что этот метод уже является достаточно разработанным рабочим инструментом науки.

С помощью мюониевого метода удалось измерить с высокой точностью ($5 \pm 10\%$), недостижимой для традиционных химических методов, абсолютные константы скоростей химических реакций атомарного водорода ^{1/}, изучить механизмы реакций водородного атома с органическими и неорганическими соединениями различных классов, определить соотношение вероятностей взаимодействия атомарного водорода по параллельным каналам реакций ^{2/}. Эти данные весьма важны для теории химической кинетики и для проектирования промышленного химического производства.

Большие успехи достигнуты при использовании мюониевого метода при изучении твердого тела. Так, в работах ^{3/} изучена природа взаимодействия водородного атома в кристаллической решетке полупроводниковых материалов и диэлектриков. Важные результаты были получены при изучении металлов с помощью положительных мюонов. Так, в работах ^{4/} изучены скорость и механизмы диффузии мюона в металлах, что весьма важно для понимания поведения примесного водородного атома в этих условиях. Перспективным оказалось также использование положительных мюонов для изучения магнитных фазовых периодов в металлах ^{5/}. Перспективы дальнейших работ в этом направлении весьма широки ^{6/}.

С помощью поляризованных отрицательно заряженных мюонов можно моделировать поведение атомов и более тяжелых, чем водород. При остановке в среде отрицательно заряженного мюона он, подобно электрону, захватывается на орбиту вокруг ядер атомов или молекул среды. После перехода мюона в его самое низкое (основное) состояние образуется система, называемая мезонным атомом и состоящая из ядра, мюона на его орбите вблизи ядра и электронной оболочки, содержащей на один электрон меньше, чем у исходного атома, принявшего мюон (мюон вблизи ядра экранирует единицу его заряда). Такой поляризованный и радиоактивный (по мюону) атом существует в различных веществах от 2 мкс (в легких) до 0,1 мкс (в тяжелых), ибо такое время существует сам отрицательный мюон.

Измерение поляризации мюона в различных мезоатомах дало возможность впервые измерить константы скоростей ряда химических реакций атомарных радикалов бора и азота^{/7/}. Обычными химическими методами поведение весьма активных атомарных радикалов количественно изучать вообще невозможно. Измеряя релаксацию спина отрицательного мюона^{/8/}, можно получить уникальную информацию о скорости и механизмах диффузии тяжелых атомов. Следует подчеркнуть основные особенности изучения быстрых химических реакций с помощью метода, основанного на измерениях остаточной поляризации положительных или отрицательных мюонов. Исследованию таким методом поддаются чрезвычайно быстрые химические реакции, протекающие за время $\approx 10^{-12}$ с. Характерно также, что в исследуемом объеме вещества обычно находится не более одного мюония или мезоатома; следовательно, степень изменения изучаемого вещества пренебрежимо мала. Для химической кинетики значительный интерес представляет исследование именно начальных условий протекания реакции, когда отсутствует осложняющее действие вторичных частиц, образовавшихся в результате реакции. Важно также отметить, что поведение мюония и мезоатомов с равным успехом можно проводить в газовой, жидкой или твердой фазах вещества.

Большое будущее имеет применение отрицательных мюонов для определения элементного состава уникальных объектов, например организма живого человека. Возможность такого использования мюонов базируется на том, что после образования мезоатома мюон, переходя с одной орбиты на другую, испускает характерное мезорентгеновское излучение, энергетический спектр которого позволяет идентифицировать атом, захвативший мюон. Если мюоны останавливаются в механической смеси различных атомов, то атомный захват мюона пропорционален относительному количеству различных атомов в смеси и по относительной интенсивности характерных линий, принадлежащих разным мезоатомам, можно определить элементный состав образца без его разрушения.

Несмотря на то, что общие закономерности атомного захвата мюонов в различных химических соединениях еще только изучаются^{/9/}, в ряде случаев, а именно для соединений с известным химическим составом (организм животных и человека), уже сейчас представляется возможным изучать изменения в элементном составе. Этим обусловлен большой интерес, проявляемый к изучению элементного состава (и его изменений) живых организмов.

Впервые в 1973 году в ДИИ ОИЯИ совместно с ИМБП МЗ СССР начаты эксперименты по определению элементного состава животных — белых крыс линии Вистар — в условиях конкретного медико-биологического эксперимента /10/. Было выполнено исследование изменений в элементном составе (по 10 элементам) организма этих животных, вызванных трехнедельным их пребыванием на ИСЗ "Космос-605" и "Космос-690". Для иллюстрации возможностей метода полезно сообщить, что при облучения мюонами в течение 5+7 часов содержание кальция (около 1%), например, измерено с относительной точностью $\pm 3\%$. Показано, что элементный состав существенно не изменился после полета. Полученные данные подтверждают предположение о том, что в результате воздействия факторов космического полета, по-видимому, не происходит выноса тяжелых элементов из организма животных, но происходит перераспределение их между тканями организма.

Учитывая низкую дозу поглощенного излучения на одно измерение (около 0,2 бэр), а также возможность локализации места останковки мюонов в организме, эту методику (мюонная диагностика) можно рекомендовать для самого широкого использования в медико-биологических исследованиях.

Весьма перспективным для различных научных направлений представляется использование отрицательно заряженных пи-мезонов (пионов). Они, так же как и отрицательно заряженные мюоны, захватываются на атомные или молекулярные орбитали и, испуская мезорентгеновское излучение, переходят на более низкие орбиты. Однако в отличие от мюона, пи-мезон на мезоатомных орбитах весьма интенсивно взаимодействует с ядрами и весьма специфически — с протонами; продукты его взаимодействия с протоном легко отделить от всех других. Оказалось /9/, что вероятность ядерного поглощения пиона протоном сильно зависит от того, в каком состоянии находится водородный атом и каков характер его связи с более тяжелыми соседними атомами.

К настоящему времени установлено /11/ большое количество корреляций вероятности поглощения пиона протоном с различными химическими параметрами (силы кислот и оснований, количества водородных связей и т.д.), что позволяет надеяться на разработку в будущем нового мощного метода исследования структуры водородсодержащих соединений.

Большие потенциальные возможности представляет открытое в ЛЯП ОИЯИ влияние физико-химических свойств вещества на структуру спектра мезорентгеновского излучения ^{12}C на настоящему времени наблюдалось много химических эффектов при измерении мезорентгеновских спектров ^{13}C , однако причины этих весьма интересных эффектов еще однозначно не определены.

Использование мезонов для решения задач, далеких от физики элементарных частиц, начатое впервые в ЛЯП ОИЯИ и находящееся в постоянном развитии, сегодня прочно вошло в тематику работ, проводимых на всех мезообразующих ускорителях мира. Для развития этих исследований в ОИЯИ решающее значение имеет реконструкция синхротронного ЛЯП и существенное повышение интенсивности мезонных пучков.

Литература

1. Мясцева Г.Г. и др. ХВЭ, 4, 447 (1970);
Минайчев Е.В. и др. ЖЭТФ, т.66, 1926 (1974);
Мясцева Г.Г. и др. ХВЭ 12, 281 (1978)
2. Мясцева Г.Г. и др. ХВЭ 3, 510 (1969);
Ивантер И.Г. и др. ЖЭТФ, 62, 14 (1972);
Бяков В.М. и др. ХВЭ 12, 279 (1978)
3. Андрианов Д.Г. и др. ЖЭТФ 58, 1896 (1970);
Кудинов В.И. и др. Письма в ЖЭТФ 21, 49 (1975);
Д.Г.Андрианов и др. ФТП 10, 1167 (1976);
В.И.Кудинов и др. ЖЭТФ 70, 2041 (1976);
В.И.Кудинов и др. Письма в ЖЭТФ 25, 331 (1977);
Д.Г.Андрианов и др. ФТП 12, 161 (1978);
Д.Г.Андрианов и др. ФТП 12, 202 (1978);
И.И.Гуревич и др. ЖЭТФ, 60, 471 (1971);
Б.А.Никольский. Мезоны в веществе. Дубна, Д1,2-14-10908, (1977) стр. 246
4. I.I.Gurevich et al. Phys.Lett., 40A, 143 (1972);
В.Г.Гребинник и др. ЖЭТФ, 68, 1548 (1975);
В.Г.Гребинник и др. Препринт ИАЭ-2635 (1976);
В.Г.Гребинник и др. Мезоны в веществе. Дубна, Д1,2-14-10908 стр. 266 (1977)
5. И.И.Гуревич и др. ЖЭТФ, 68, 806 (1975);
И.И.Гуревич и др. Письма в ЖЭТФ, 21, 16 (1975);
И.И.Гуревич и др. ЖЭТФ 69, 1453 (1975);

- В.Г.Гребинник и др. Мезоны в веществе. Дубна, ДИ,2-14-10908, стр. 261 (1977)
6. И.И.Гуревич и др. ЭЧАЯ, 8, вып. I, стр. 110 (1977);
В.П.Смиага. Мезоны в веществе. Дубна, ДИ,2-14-10908, стр. 229 (1977).
7. T.S.Evseev. Muon Physics, vol.3, p.235, Acad.Press (1975);
В.С.Евсеев и др. Мезоны в веществе, Дубна, ДИ,2,14-10908, стр. 319 (1977)
8. В.С.Евсеев и др. Письма в ЖЭТФ, 27, 249 (1978)
9. С.С.Герштейн и др. УФН, 97, I (1969);
Л.И.Пономарев. Ann.Rev.Nucl.Sci.,23, 396 (1973)
С.С.Герштейн, Л.И.Пономарев, Мезоны в веществе, Дубна ДИ,2,14-10908, стр. 17 (1977)
10. K.Arlt, et al. Akademie der Wissenschaften der DDR Zentralinstitut für Kernforschung, Rossendorf bei Dresden, ZFK-243, Gemeinsamer Jahresbericht 75, August (1974); публикация ОИЯИ, Р18-11844 (1978).
11. В.И.Петрухин. Труды IV Международной конференции по физике высоких энергий и структуре ядра, Дубна, ДИ-6349, стр. 431 (1971);
И.Дежи и др. Мезоны в веществе, Дубна, ДИ,2,14-10908, Дубна стр. 123 (1977)
12. Зинов В.Г. и др. ЯФ 5, 591 (1967)
13. К.Андерт и др. Дубна, Р15-10661 (1977);
В.С.Евсеев и др. Дубна, Р15-10662 (1977);
В.Г.Зинов и др. Мезоны в веществе. Дубна, ДИ,2,14-10908, стр. 150 (1977)

**Активационный анализ
в народном хозяйстве**

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СЛЕДОВЫХ КОНЦЕНТРАЦИЙ ЭЛЕМЕНТОВ ПРИ ПОМОЩИ
НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА И ЕГО ПРИМЕНЕНИЕ В
НАРОДНОМ ХОЗЯЙСТВЕ

Х.Герстенбергер, М.Гейслер, Х.Шельхорн

Центральный институт изотопных и радиационных исследований
Академии наук ГДР, Лейпциг

Определение малейших концентраций элементов в веществах различного происхождения играет в самых различных отраслях народного хозяйства все большую роль. И хотя нейтронный активационный анализ получил уже значительное распространение при решении непосредственных народнохозяйственных задач, его все еще следует рассматривать как довольно новый метод.

С постоянно растущим числом имеющихся в распоряжении исследователей мощных исследовательских реакторов и других источников излучения расширяется спектр применения активационного анализа. Однако из-за сравнительно высоких затрат на аппаратуру он и в будущем не заменит традиционных методов анализа следовых концентраций элементов, а рационально дополнит их.

Превосходство метода активационного анализа по сравнению с другими методами следового анализа заключается, в частности, в

- низком нижнем пределе измеримости для множества элементов;
- неразрушении образца при не слишком сложной матрице;
- меньшей опасности загрязнения пробы определяемыми элементами из окружающей среды и использованных реактивов.

Международный союз чистой и прикладной химии несколько лет тому назад опросил 188 лабораторий мира, работающих в области анализа следовых концентраций элементов, какими методами анализа они пользуются. Результаты опроса показаны в табл. I. Видно, что активационный анализ занимает среднее место.

Важными характеристиками аналитического метода анализа следовых концентраций является нижний предел измеримости, а также правильность и воспроизводимость измеряемых величин.

Таблица I

Результаты опроса Международного союза чистой и прикладной химии (IUPAC) об используемых методах анализа следовых концентраций элементов в 188 лабораториях мира*.

	число лабораторий, использующих метод
Калориметрия и фотометрия	78
Атомно-абсорбционная спектрометрия	75
Эмиссионная спектрометрия	43
Полярография	35
Активационный анализ	26
Рентгеновская флуоресценция	25
Пламенная спектрофотометрия	17
Масс-спектрометрия с искровым источником	12
Электрические методы	10
Ионно-селективные электроды	8
Хроматография	6

* Данные взяты из Pure and Appl. Chem. **27**, 483 (1974))

В табл. 2 представлены нижние пределы измеримости для наиболее часто применяемых методов анализа следовых концентраций. В графе 1 указаны нижние пределы измеримости в единицах массы, а в графе 2 - минимальные концентрации определяемого элемента в растворе.

При таком сопоставлении становится ясным, что активационный анализ занимает очень выгодное место. Конечно, в этом случае имеется ряд элементов, которые из-за слишком низких сечений реакций и при слишком коротком или слишком длительном времени полураспада плохо поддаются определению.

Если для оценки воспроизводимости определенных результатов существуют разнообразные и зрелые статистические методы, то о верности соответствующих результатов анализа могут быть сделаны

Таблица 2

Нижние пределы измеримости при различных методах анализа следовых концентраций^{/3, 4/}

Метод	Нижний предел измеримости			
	в массовых единицах (по /3/) (МКТ)		в единицах концентрации (по /4/) (МКТ/мл = ppm)	
Калориметрия/фотометрия	10^{-3}	(10^{-5})	0,15	($5 \cdot 10^{-2}$)
Атомпоглощательная спектрометрия	10^{-5}	(10^{-7})	10	($5 \cdot 10^{-2}$)
Атомфлуоресцентная спектрометрия	10^{-4}	(10^{-5})	0,25	($5 \cdot 10^{-3}$)
Эмиссионная спектрометрия	10^{-4}	(10^{-5})	0,5	($5 \cdot 10^{-3}$)
Пламенная спектрофотометрия	-		50	($5 \cdot 10^{-4}$)
Масс-спектрометрия	10^{-6}	(10^{-9})	10^{-2}	($5 \cdot 10^{-3}$)
Активационный анализ	10^{-7}	(10^{-8})	0,2	($5 \cdot 10^{-4}$)

Примечание: Названные данные достигнуты при определении большого количества элементов, данные в скобках - только нескольких элементов.

часто лишь неточные высказывания. Приготовление надежных эталонных проб в этих диапазонах концентраций весьма затруднительно и поэтому обычно верность анализа следовых концентраций определяется по измеренным различными методами данным в интервале их надежных значений. Большие успехи могут быть достигнуты в этом отношении путем сопоставления результатов измерения из различных лабораторий. Такие сопоставления проводятся в рамках СЭВ и МАГАТЭ. Несколько месяцев тому назад МАГАТЭ (Международное агентство атомной энергии)^{/5/} представило доклад о результатах измерений проб почв из Перу. В этих измерениях принимали участие 60 лабораторий, в том числе из Советского Союза Всесоюзный институт морского

рыболовства и океанографии, а из ГДР – наш институт. И хотя преобладающее число участников, как это видно из табл.3, пользуется методом активационного анализа, были применены и другие методы анализа следовых концентраций. Таким образом, полученные результаты, указанные в таблице 4, очень надежны с точки зрения их верности и воспроизводимости.

Таблица 3

Методы, используемые при анализе *SOLL-5*

Метод	Отн. доля метода в определении всех средних значений (%)
Активационный анализ	53,2
Атомасорбционная спектрометрия	20,2
Рентгеновская флуоресценция	16,8
Эмиссионная спектрометрия	4,8
Масс-спектрометрия	2,5
Калориметрия и спектрофотометрия	1,9
Флуориметрия	0,3
Объёмный анализ	0,2
Измерение естественной радиоактивности (для U)	0,1

Со времени выделения геохимии в самостоятельную область науки, начавшегося только в начале этого века и тесно связанного с именами Вернадского, Кларке и Гольдшмидта, резко углубилось наше понимание геологических процессов на основе свойств элементов, которые имеются только в следовых концентрациях, таких как, например, редкоземельные элементы и платиновые металлы. Так, о перспективности рудоносности гранитов, а также генезисе данных гранитов можно судить по абсолютному содержанию, а также по соотношению концентраций элементов или при сравнении концентраций ассоциации двух минералов^{1/}. Здесь имеет значение существование стандартных пород, содержание которых точно определено различными методами анализа, чтобы наряду с узким доверительным интервалом измерен-

Таблица 4

Результаты сравнения измерений следовых концентраций.

Макрокомпоненты

Элемент	содержание (%)	Элемент	содержание (%)
Al	3,19 ± 0,28	Pb	4,45 ± 0,19
K	1,86 ± 0,15	(Ca)	2,2)
Na	1,92 ± 0,11	(Mg)	1,5)

Микрокомпоненты

Элемент	содержание (мкг/г)	Элемент	содержание (мкг/г)
As	93,9 ± 7,9	Si	52,1 ± 33
Be	1,77 ± 0,27	Ta	0,336 ± 0,044
Ba	561 ± 53	K	852 ± 37
Br	5,4 ± 1,0	Nd	29,9 ± 1,6
Ce	59,7 ± 3,0	Pb	129 ± 26
Cr	28,9 ± 2,8	Rb	138 ± 7,4
Co	14,8 ± 0,76	Sb	14,3 ± 2,2
Cu	77,1 ± 4,7	Sm	5,42 ± 0,39
Dy	4,0 ± 1,0	Se	14,8 ± 0,65
Eu	1,18 ± 0,08	Ta	0,764 ± 0,056
Ga	18,4 ± 1,6	Tb	0,665 ± 0,075
Hf	6,30 ± 0,30	Th	11,3 ± 0,73
Ho	0,82 ± 0,83	U	3,04 ± 0,51
La	23,1 ± 1,5	Yb	2,24 ± 0,20
		Zn	368 ± 8,2

ных значений гарантировать и высокую степень их правильности. Сложная геологическая структура Рудных Гор в нашей стране требует многообразных геохимических исследований, в которых принимает участие наш институт с использованием методов ядерного анализа, причем применение этих методов не ограничивается определением следовых концентраций элементов, а распространяется также на ис-

Таблица 4а

Сравнение результатов определения Cs различными способами в стандартных породах (в мкг/г)

	Гранит ГМ	Базальт БМ	Глинист. сланец	Известняк	Черный глинист. сланец	полевоы шпат	серпентинит	Грейзен
инструментальный активационный анализ	9,2 ± 0,3		12,2 ± 0,3	1,38 ± 0,02	13,8 ± 0,6	3,14 ± 0,37		50,3 ± 1,4
актив. анализ с радиохиич. разделением Cs (сбосаждение)	8,8 ± 0,3	2,63 ± 0,24	12,9 ± 0,2	1,59 ± 0,10	15,3 ± 0,8	2,88 ± 0,16	0,114 ± 0,021	51,2 ± 1,5
актив. анализ с радиохиич. разделением Cs (селективная экстракция)	9,0 ± 0,3	2,54 ± 0,43	11,8 ± 2,9	1,60 ± 0,16	16,1 ± 0,8	3,00 ± 0,37	0,124 ± 0,049	54,1 ± 1,1

Примечание: Данная погрешность является доверительным интервалом (95% - доверительная вероятность)

следование и интерпретацию радиогенных и нерадиогенных вариаций изотопного состава ряда элементов.

Следовый анализ ископаемых и пород вследствие крайне комплексных и сильно меняющихся матриц относится к наиболее сложным задачам в этой области. В сотрудничестве с Центральным геологическим институтом Министерства геологии ГДР мы провели исследования по определению следовых концентраций на стандартных породах, результаты которых мы бы хотели вам представить. При исследовании стандартных пород геохимии хотели бы иметь полные данные о концентрации всех содержащихся в пробе элементов. Методы активационного анализа, как и почти все другие современные методы анализа с помощью приборов, мало пригодны для этого. Исключением является масс-спектрометрия с искровым ионным источником. Этот метод позволяет относительно быстро получить представление о содержании макро- и микрокомпонентов, однако нередко вследствие зависимости относительных вероятностей ионизации отдельных элементов от матрицы и вследствие интерференций при ряде масс, которые не в каждом случае могут быть своевременно опознаны и достаточно хорошо скорректированы, могут возникнуть значительные систематические ошибки. Но воспроизводимость масс-спектрометрии с искровым ионным источником хуже в сравнении с активационным анализом. В наших работах зарекомендовала себя комбинация масс-спектрометрии с активационным анализом. Масс-спектрометрию мы используем при этом, как уже было сказано, для получения обзора о содержании большого числа элементов. Для этого мы используем как собственный аппарат, так и советский масс-спектрограф МХ 3301. Для точного определения особо интересных микроэлементов мы используем метод активационного анализа.

Одним из интересных элементов с точки зрения геологии является цезий, определение концентрации которого обычными химическими методами затруднительно. Мы получили задание на большом количестве геологических проб определить содержание цезия в интервале концентраций от 100 $\mu\text{ррм}$ до нескольких $\mu\text{ррб}$. Для этой цели были разработаны три различных метода активационного анализа:

- а) инструментальный,
- б) путем соосаждения с тетрафенилборатом калия после радиохимического отделения цезия,
- в) путем селективной экстракции тетрафенилбората цезия (после радиохимического отделения) с помощью нитробензола в присутствии цезия-137 как меченого атома для радиометрического определения выхода.

Эти методы сначала были испытаны на стандартных породах. В табл. 4а сопоставлены данные о содержании цезия для 8 стандартных пород, определенные указанными методами. Хорошее совпадение полученных различными методами результатов говорит об их достоверности и применимости этих методов для точного анализа на цезий. В основу определения положена реакция $^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$. Изотоп ^{134}Cs с периодом полураспада 2,3 года и энергией гамма-излучения 604 и 796 кэВ после распада короткоживущих изотопов матрицы хорошо определяется инструментальным методом. При нейтронном потоке в $1 \times 2 \times 10^{13}$ н/см²·с, времени облучения 100 ч и времени выдержки от 4 до 6 недель в навеске породы 10-15 мг надежно определяется концентрация цезия в несколько ppm. В капсулах облучения совместно со стандартами одновременно облучались от 20 до 30 проб.

Радиохимические методы использовались только в тех случаях, когда определение с помощью инструментального метода было невозможно. Так, определение вольфрама путем активационного анализа, создает некоторые проблемы. Это объясняется тем, что

- содержание вольфрама во многих геологических пробах составляет всего 1 мкг/г,
- период полураспада наиболее благоприятного для определения изотопа вольфрама ^{187}W составляет 24 часа, и потому, на уровне активности уже неоднократно названных матричных элементов, чисто инструментальное определение невозможно;
- точность аналитического метода анализа вольфрама низка из-за явлений его фракционирования при разделении.

Мы опробовали осаждение вольфрама в виде вольфрамовой кислоты и выяснили условия, позволяющие применять этот метод. Облученная проба породы снова была обработана плавиковой кислотой/серной кислотой. Полученный осадок растворялся в HCl и высушивался. Далее к матку была добавлена 20-процентная азотная кислота, содержащая по 1 мкг Fe, Sc, Na, K и лантана в качестве удерживающего агента. При нагревании раствора в осадок выпадала кристаллическая вольфрамовая кислота. Собранный на стеклянном фильтре осадок еще раз пересаждался для повышения его радиохимической чистоты. Для определения концентрации вольфрама в осадках обрабатывались 479- и 686-кэВ пики ^{187}W . Химический выход данного метода определялся гравиметрически с помощью оксина и составил 75-92%. Полученные для некоторых пород значения приведены в табл. 5. Наши работы показали, что анализ геологических проб на вольфрам дает хорошие результаты

Таблица 5

Концентрация W в некоторых стандартных породах

Порода	число измерений	среднее значение концентрации (мкг/г)	\bar{b} (мкг/г)
Базальт МБ	16	0,55	0,031
Гранит ГМ	16	1,18	0,05
Известняк	16	0,35	0,055
Глинистый сланец	16	2,42	0,13

Таблица 6

Относительное содержание изотопов осмия в "обычном" осмии и в осмии образца Раммельсберга

Образец	Изотопы осмия (относ. конц. %)					
	I86	I87	I88	I89	I90	I92
"Обычный" осмий	1,59	1,64	13,3	16,1	26,4	41,0
Осмий Раммельсберга	0,27	83,0	2,27	2,74	4,50	6,99

Таблица 7

Биоэлементы и вредные для растительных и живых организмов элементы

Биоэлементы	Вредные элементы
C, O, H, N, S, P (Cl, Br, J)	Se, Te, As, Sb, Bi
Na, K, Mg, Ca	F
B	Be, Na
Mo, V, Mn	Th, U и другие радиоакт. элементы
Fe, Co	Cr, W, Re
Cu, Zn	Ni
	Ag, Cd, Hg, Tl, Sn, Pb

при содержании его в пробах менее 10 ppm. Тем самым он является ценным дополнением к рентгено-флуоресцентному анализу, который применяется для пород с большими концентрациями вольфрама. Общеизвестно, что при активационном анализе содержание элемента определяется по одному или нескольким его изотопам. Но активационный анализ только в редких случаях используется для изотопного анализа. Объясняется это в основном тем, что при изотопном активационном анализе общая масса исследуемого элемента чаще всего не определяется. Хотя при использовании элементного активационного анализа не учитывается непостоянство изотопного состава элементов в природе, ошибки анализа из-за различного изотопного состава в большинстве случаев меньше по сравнению с другими долями ошибок. Исключением является осмий. Вследствие естественного распада ^{187}Re в породе непрерывно накапливается осмий-187. Так как содержание осмия в породах обычно мало (0,1-10 ppm), то возможно значительное смещение изотопного состава осмия. При этом отсутствие Re в пробе, как могли доказать Майер и др.¹⁷¹, не является признаком принятого природного изотопного состава осмия. В указанной работе в пробах горы Раммельсберг, расположенной в части Гарца, входящей в состав ФРГ, изотопный состав (см. табл.6) значительно отличается от принятого, хотя в пробах не был обнаружен рений. В молибденитах, как показали Герр и Мерц¹⁸¹, доля радиогенного осмия-187 составляет от 96,5 до 99,9 атомных процента при общем содержании осмия от 1 до 8 мкг/г. Таким образом, при определении осмия активационно-аналитическим методом по осмию-191 определяется нерадиогенное содержание осмия. Из-за летучести OsO_4 особое внимание следует уделять методу химического разложения и разделения. Одновременно и независимо от Апта и Гледнея¹⁹¹ мы установили, что неоднократно описанный метод разложения пробы путем плавления с перекисью натрия¹⁹¹ ведет к потерям через улетучивание Os в виде OsO_4 . Поэтому мы провели разложение с полифосфорной кислотой в тугоплавкой трубке. Определения осмия до сих пор производились на глинистых сланцах, черных глинистых сланцах, грейзенах и базальтах, содержание осмия в этих породах лежит в интервале от 0,1 до 2,0 мкг/кг. Нижняя граница определения содержания осмия нашего метода около 0,01 мкг/кг.

Увеличение урожайности в сельскохозяйственном производстве и применение микробиологических методов для получения белковых кормов резко повысили интерес к определению содержания микроэлементов и в этой отрасли промышленности. Неко-

торые элементы признаны важными для жизненных процессов, другие - вредными для них (табл. 7). Причем, такая классификация не может быть абсолютной, ибо как недостаток, так и избыток указанных биоэлементов может быть вредным. Представление об этом дает рис. I.

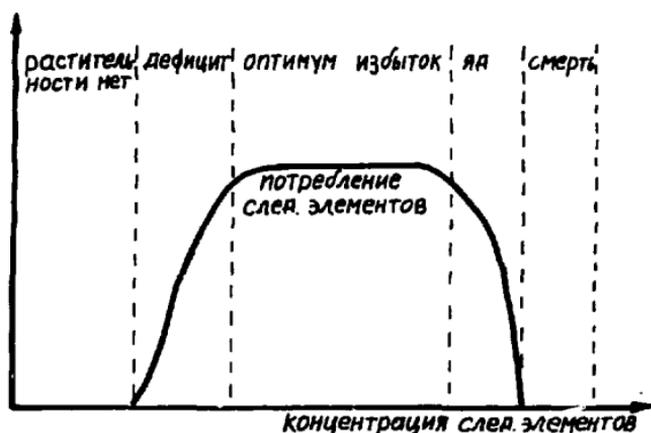


Рис. I.

Путем соответствующих исследований должен быть определен диапазон "области" 3 и согласно этому установлена концентрация в биологических питательных средах. Таким образом, открылась широкая область применения анализа следовых концентраций элементов. В медицине до сих пор известны определенные влияния только цинка, меди, марганца, хрома и молибдена; более подробные сведения имеются только о цинке и меди^[2].

Химическая промышленность и химические исследования тоже очень часто нуждаются в методах следового анализа. До сих пор известно немного аналитических методов, пригодных к использованию для непосредственного анализа определенных компонентов в технологическом процессе. Среди этих методов нейтронно-активационный анализ с использованием изотопных источников нейтронов или нейтрон-

ных генераторов играет существенную роль. Активационный анализ также нашел широкое применение во многих областях, например в исследовании окружающей среды, исследовании процессов износа и контроле особо чистых веществ. В связи с получением кормового белка из фракций нефти мы исследовали содержание микроэлементов в сухом веществе дрожжевых бактерий. В пробе следовало определить такие элементы, как марганец, медь, молибден, хром, железо, кобальт, цинк, кадмий, мышьяк и селен. По опыту известно, что в биологических пробах как характерные примеси выступают ^{24}Na , ^{42}K и ^{32}P . Их отделение является одной из главных задач при определении следовых концентраций в биологическом материале. После перевода проб в растворимую форму в смеси азотной и соляной кислот в присутствии носителя определяемых элементов по методу Лигарди и Саббиони^{16/} остаток был растворен в HCl и два раза перемешан с гидратизированной полупятиокисью сурьмы. Таким образом, могли быть отделены 99,5% ^{24}Na . Поведение снабженных носителем микроэлементов было исследовано с помощью меченых радиоактивных атомов.

Как показывает таблица 8, адсорбция этих элементов настолько незначительная, что ею можно пренебречь. С целью устранения примесей активности ^{32}P были исследованы такие методы: осаждение ^{32}P совместно с фосфатом циркония, адсорбция ^{32}P с ранее осажденным и снова добавленным фосфатом циркония, а также адсорбция фосфата с осажденным незадолго до добавления фосфатом циркония. За исключением мышьяка, хрома и селена, у всех трех видов отделения ^{32}P 96-99% первоначальной активности исследованных микроэлементов оставались в растворе.

При использовании указанных методов адсорбции хром тоже полностью остается в растворе и может быть определен с помощью инструментального метода. Так, путем съемки гамма-спектров с помощью Ge(Li)-детектора с активным объемом в 23 см³ и 4096-канальным анализатором были определены через несколько часов после окончания активации ^{64}Cu , через 3 дня - ^{99}Mo , ^{115}Cd и ^{76}As и через 10 дней - ^{54}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn и ^{75}Se . Полученные гамма-спектры показаны на рис. 2, причем верхний снят через 9,5 дней после окончания

Таблица 6

Химические свойства следовых элементов при разделении ^{24}Na с помощью гидрат - Sb_2O_5 .

Элемент	Количество носителя мг	% следового элемента в растворе после адсорбции Na-24
As	10	97
Cd	1	96
Co	1	100
Cr	1	97
Cu	1	100
Fe	1	100
Mn	1	100
Mo	10	96
Se	10	97
Zn	1	100

облучения до отделения ^{24}Na и ^{32}P , а нижний - в то же время, но после отделения. После отделения фона тормозного излучения от β -распада ^{32}P более отчетливо видны пики малых энергий от различных элементов.

Мы сравнили три возможных метода, а именно:

- чисто инструментальный анализ;
- инструментальный анализ после отделения возмущающих активностей;
- измерение активности после радиохимического отделения некоторых элементов.

Полученные результаты приведены в табл. 9.

Из таблицы видно, что совпадение величин, полученных разными методами, удовлетворительное (за исключением молибдена). Однако, как это видно из таблицы 10, эти методы дают существенно различные нижние пределы измерения.

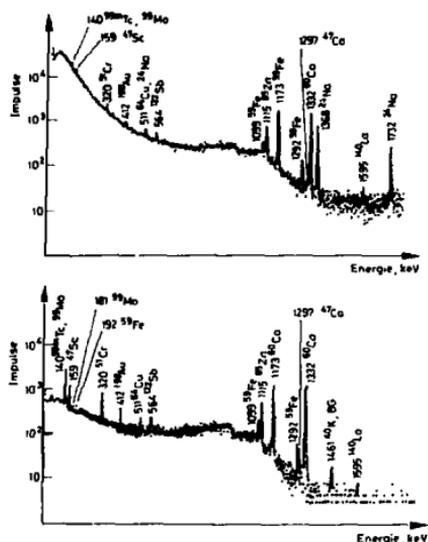


Рис. 2.

В заключение можно сказать, что следовый анализ на биологическом материале требует, вообще говоря, отделения или выдержки времени, необходимого для распада возмущающих активностей ^{24}Na и ^{32}P . Если необходимо достичь низких пределов измерения, то надо производить радиохимическое разделение определяемых элементов.

Примеры, на которых я здесь подробно останавливался, иллюстрируют некоторые работы нашего института в данной области. В частности, мы занимаемся изучением проблем, связанных с поведением изотопов и элементов в различных сферах природы. По этой причине одним из дальнейших основных моментов работы в нашем институте, наряду с элементным анализом, явится также изотопный анализ с помощью масс-спектрометрических и некоторых других методов.

Таблица 2.

Сравнение концентраций элементов, полученных при использовании разных методов

Элемент	Концентрация (всг)		
	Инструментальный метод	Инструментальный метод после разделения металлами активностей Р-32 и Na-24	Измерение активности после радиохимического разделения
Mn	246 ± 20	208 ± 21	256 ± 13
Cu	131 ± 9	132 ± 9	147 ± 10
Mo	6,5 ± 2,8	9,1 ± 1,1	9,8 ± 1,2
Cr	3,8 ± 0,4	3,6 ± 0,2	4,0 ± 0,3
Fe	293 ± 158	206 ± 67	168 ± 51
Co	8,8 ± 0,2	8,1 ± 0,7	7,9 ± 0,9
Zn	73 ± 6	72 ± 9	83 ± 12
Cd	-	-	0,31 ± 0,02
As	-	-	0,10 ± 0,01
Se	-	-	0,016 ± 0,03

Таблица 10

Сравнение нижних пределов измеримости при использовании разных методов

Элемент	Изотоп	Нижний предел измеримости (врт)		
		Инструментальный метод	Инструментальный метод после разделения мешающих активностей Р-32 и Na-24	Измерение активности после радиохимического разделения
Mn	Mn-56	7,0	0,18	0,0006
Cu	Cu-64	11,0	0,4	0,001
Mo	Mo-99m	14,0	0,52	0,022 +
Cr	Cr-51	2,1	0,83	0,06 +
Fe	Fe-59	250,0	120,0	0,96 +
Co	Co-60	0,27	0,16	0,008 +
Zn	Zn-65	13,0	10,0	0,35 +
Se	Se-75	0,85	0,28	0,016 +
As	As-76	1,3	0,035	0,005
Cd	Cd-115	70,0	2,0	0,22

+ измерение при использовании NaJ(Tl)- детектора

Литература

1. E.Schroll. Analytische Geochemie, Ferd.Enke Verlag, Stuttgart, 1976.
2. I.J.T.Davies. "Medical significance of the essential biological metals", Plenarvortrag auf der 5. Internationalen Konferenz "Modern Trends in Activation Analysis", München 1976.
3. G.Tölg, Naturwissenschaften 63, 099 (1976).
4. O.G.Koch, G.A.Koch-Dedic, Handbuch der Spurenanalyse, Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York 1974.
5. R.Dybczynski, A.Tugsavul, O.Suschny. Report on the inter-comparison run SIL-5 for the determination of trace elements in soil, IAEA/R4/46, Jan.1978.
6. F.Girardi, E.Sabbioni, J.Radional. Chem. 1, 169 (1968).
7. H.Meier, E.Unger, D.Börsche, W.Albrecht, G.Zeitler, W.Hecker, P.Menge, E.Zimmerhackl, Erzmetall 27, 482 (1974).
8. W.Herr u. E.Merz, Z.f. Naturforsch. 13a, H.3, 1958.
9. K.E.Apt u. E.S.Gladney, Anal.Chem. 47, 1484 (1975).
10. R.A.Nadkarni, G.H.Morrison. Anal.Chem., 46, 232 (1974).

ВОЗМОЖНОСТЬ ИНСТРУМЕНТАЛЬНОГО НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО
И РЕНТГЕНОФЛЮОРЕСЦЕНТНОГО МЕТОДОВ АНАЛИЗА МОРСКИХ
ДОННЫХ ОБРАЗОВАНИЙ.

Н.А. Дандбург, Г.Г. Микельсон, Л.Л. Пелекис,
И.Д. Штраус, Д.В. Крьев

Институт физики Академии наук Латвийской ССР,
всесоюзный НИИ морской геологии и геофизики, Рига

Из всех применяемых в геологии аналитических методов нейтронно-активационный обладает самой высокой чувствительностью и точностью. Однако до последнего времени он применялся сравнительно мало для изучения элементного состава минеральных образований дна морей и океанов. Перед нами стояла задача выяснения возможностей инструментального варианта анализа, разработка достаточно простых и производительных методик количественного определения элементного состава морских донных образований для нужд геологоразведочных работ и проверка их на конкретном материале донных осадков. Нами проведено исследование коллекций донных осадков, охватывающих практически все основные климатические зоны современного осадконакопления - осадки Тихого, Атлантического и Индийского океанов и Балтийского, Восточно-Сибирского и Чукотского морей^{1,2,3/}. Кроме того, была проанализирована коллекция образцов, характеризующая все основные литофациальные разности донных осадков Рижского залива - пески, алевроиты, глины, илы, железомарганцевые конкреции^{4/}.

Результаты наших исследований проб различных акваторий показали, что в образованиях дна морей и океанов возможно определить до 26 химических элементов. В таблице I представлены радиоизотопы, использованные для определения этих элементов, а также периоды полураспада и аналитические гамма-линии. Основные особенности методик инструментального нейтронно-активационного анализа различных донных образований находятся в прямой зависимости от их генетического типа, и число определяемых элементов зависит от количественных соотношений ряда макро- и микроэлементов, в

Таблица 1

Свойства, обусловленные влиянием пористости на коэффициент

Элемент	Радионуклид	Период полураспада	Активность γ - линии, %
Na	24 Na	15,05 ч	100
Sc	46 Sc	83,81 сут	100
Ti	47 Ti	3,7 сут	100
Cr	51 Cr	27,8 сут	100
Mn	56 Mn	2,58 ч	100
Fe	59 Fe	44,6 сут	100
Co	60 Co	5,27 а.	100
As	76 As	1,12 сут	100
Br	82 Br	1,17 сут	100
Rb	86 Rb	48,8 сут	100
Zr	95 Zr	70,6 сут	100
Sb	124 Sb	60,5 сут	100
Ba	131 Ba	11,52 сут	100
Cs	134 Cs	2,06 а.	100
La	140 La	1,68 сут	100
Ce	141 Ce	32,8 сут	100
Nd	147 Nd	11,01 сут	100
Sm	153 Sm	1,5 сут	100
Eu	152 Eu	12,7 а.	100
Tb	160 Tb	72,1 сут	100
Yb	169 Yb	31,8 сут	100
Lu	177 Lu	6,71 сут	100
Hf	181 Hf	42,4 сут	100
Ta	182 Ta	114,2 сут	100
Th	233 Pa	27,1 сут	100
U	239 Np	2,35 сут	100

частности от концентрации таких элементов, как бром, вольфрам, скандий, железо, кобальт, лантан.

Изучение осадков морских бассейнов гумидной и бореальной зон показало, что с точки зрения основных мешающих анализу элементов они между собой близки и в осадках любой этих зон без особых трудностей инструментально можно определить 15-25 элементов. В глубоководных океанических осадках, обогащенных натрием, железом, кобальтом, лантаном, из-за высокого фона комptonовского рассеяния весьма затруднительно определение цезия, бария, гафния, тория, урана и некоторых других элементов. В железо-марганцевых конкрециях по долгоживущим изотопам можно определять только элементы с высокоэнергетическими аналитическими линиями (скандий, железо, кобальт, лантан, европий, сурьма), так как в области спектра $< 0,8$ МэВ практически все линии скрыты высоким комptonовским фоном рассеяния от основных элементов матрицы.

В качестве основных методик анализа предлагаются следующие. Анализируемый материал измельчается до 200 меш и высушивается при температуре 110°C до постоянного веса (около 2 часов). Аналитические навески (~ 150 мг) упаковываются в конвертики из алюминиевой фольги. Облучение проводится в течение 20 часов в канале ядерного реактора с плотностью потока тепловых нейтронов $2 \cdot 10^{13}$ нейтр./см².с. После облучения образцы выдерживаются в течение 7 - 10 суток для распада мешающих короткоживущих радиоизотопов, после чего переупаковываются и измеряются на содержание лантана. По истечении 20 - 25 суток проводится повторное измерение для определения остальных элементов по долгоживущим радиоизотопам. Продолжительность измерений составляет 10 - 30 мин.

Для определения марганца и натрия образцы облучаются в течение 10 минут в тепловой колонке ядерного реактора, где плотность потока тепловых нейтронов $6 \cdot 10^{10}$ нейтр./см².с. Измерение проводится через 2 - 3 часа после конца облучения, продолжительность измерений - Юминут.

Для определения содержания цезия, бария, гафния, тория и урана необходимо облучение в потоке резонансных нейтронов (плотность потока - $1 \cdot 10^{12}$ нейтр./см².с, продолжительность облучения 100 часов, измерение через 15-20 суток в течение 30 мин.).

В качестве эталонов использовались стандартные горные породы или их имитаторы на основе фенолформальдегидной резольной смолы. Измерительная аппаратура состояла из коаксиального 45см³

Ge(Li)- детектора и БСС-канального амплитудного пульсатора.

исследована возможность проведения рентгенофлуоресцентного анализа железно-марганцевых конкреций и корковых отложений с применением серийных полупроводниковых детекторов $\text{LiF}-\text{Li}$ и $\text{LiF}-\text{Si}$ и источников ^{109}Cd и ^{241}Am /5/. Диаметр плоской поверхности кристалла составил 40 мм. Измерения проводились по методу сканирования в пылевых слоях. Кроме определения содержания марганца, железа, никеля, меди и кобальта перспективным является определение галлия, свинца, стронция, иттрия, циркония, ванадия, молибдена в конкрециях и кальция, мышьяка, рубидия, стронция, иттрия, циркония в океанских отложениях.

Литература

1. Н.А. Дамбург, Г.Г. Микельсон, И.Д. Штраус. Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и тех. наук, 1, 7 /1977/.
2. И.Д. Штраус, Н.А. Дамбург. В сб.: "Морские геолого-геофизические исследования", Рига, "Зинатне" /1976/.
3. И.Д. Штраус, Н.А. Дамбург, Г.Г. Микельсон. Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и тех. наук, 4, 8 /1978/.
4. Н.А. Дамбург, И.Д. Штраус, Г.Г. Микельсон. Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и тех. наук, 3, 3 /1978/.
5. Д.В. Крив, Л.Л. Пелекис. Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и тех. наук, 4, 3 /1978/.

ПРИМЕНЕНИЕ ПОЛУПРОВОДНИКОВОГО Si(Li)-СПЕКТРОМЕТРА С ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКИМ ОХЛАЖДЕНИЕМ ДЛЯ МНОГОЭЛЕМЕНТНОГО АНАЛИЗА ГОРНЫХ ПОРОД И РУД В ЕСТЕСТВЕННОМ ЗАЛЕГАНИИ

В.А.Мейер, А.Н.Жуковский, В.С.Пономарев, А.В.Мейер, И.М.Лептев,
А.Д.Соколов

Ленинградский государственный университет

В работе / 1 / описывалось устройство разработанного на кафедре ядерной геофизики ЛГУ, ЛНР ОЯНИ и кафедрой микроэлектроники Черновицкого университета Si(Li)-спектрометра с термоэлектрическим охлаждением, имеющего разрешение ~ 500 эВ (по линии $\text{K}\alpha$). Небольшие габариты блока детектирования и экономичность использованной в нем термоэлектрической батареи позволили применить спектрометр для многоэлементного рентгенорадиометрического анализа горных пород и руд непосредственно в условиях их естественного залегания.

Схема блока детектирования спектрометра изображена на рис.1. Кроме детектора 1 он имел насадку 3 для источников 2 излучения и дополнительную свинцовую защиту 4. Для возбуждения характеристических спектров использовались опытные радиоизотопные источники ^{125}J .

Объектом полевых исследований служило золото-серебряное месторождение Северо-Востока СССР с серебро-аргентитовым и полиметаллическим типами руд. Наряду с серебром в рудах в значительных количествах присутствовали железо, свинец (до 1%) и цинк (до 1%). Из элементов-примесей встречались сурьма, кадмий, олово, барий, вольфрам и молибден. Среди них сурьма и кадмий часто образовывали соизмеримые с серебром концентрации как в рудных зонах, так и во вмещающих породах. Из связанного видно, что выбранное месторождение было довольно сложным, но интересным объектом для испытания полупроводникового спектрометра.

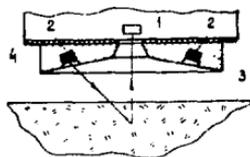


Рис.1.

В качестве измерительно-регистрирующей аппаратуры использовались анализатор импульсов АИ-256-6, блоки Лангура и цифрорпечатающее устройство БЗ-15 М. При работах в штольне стандартные блоки устанавливались на передвижной платформе. Питание их осуществлялось от промышленной шахтной сети. При измерениях перемещался в основном только датчик спектрометра, а комплекс стандартных блоков оставался на месте, пока не был исчерпан запас длины соединительных кабелей.

Измерения проводились по точкам с шагом через 10 см. На каждой точке регистрировался весь спектр, который тут же выводился на цифрорпечать. При использовании в блоке детектирования спектрометра двух источников ^{125}J активностью по 10 мКи загрузка составляла 10^4 имп/с, а экспозиция на точке была выбрана равной 3 мин.^{х)} Всего за время испытаний в штольне было получено около 150 спектров, каждый из которых регистрировался в интервале энергий от 2 до 40 кэВ.

Типичный спектр в зоне серебряного оруденения показан на рис.2. Рассматривая приведенный спектр, можно выделить в нем следующие линии. Крайний правый максимум примерно на 243 канале обусловлен когерентно рассеянной породой слабой γ - линией источника ^{125}J с энергией $\sim 35,5$ кэВ - γ (ИГ). Далее видны экстремум некогерентного рассеяния той же γ - линии - γ (НК), затем - пики когерентно и некогерентного рассеяния фотонов, испускаемого источником характеристического рентгеновского излучения теллура: $\text{TeK}\beta$ (ИГ), $\text{TeK}\beta$ (НК), $\text{TeK}\alpha$ (ИГ) и $\text{TeK}\alpha$ (НК). Левее последнего, наиболее интенсивного пика расположены возбужденные источником рентгеновские линии химических элементов, присутствующих в горной породе в данной точке. Это линии К-серий кадмия, серебра, молибдена, циркония, L - серии свинца ($\text{PbL}\gamma$, $\text{PbL}\beta$, и $\text{PbL}\alpha$), К-серии цинка и железа. На других точках и ним часто добавляется линия рубидия. Применяя вместо ^{125}J источники более жестких фотонов (^{241}Am), можно было обнаружить линии бария, сурьмы и олова. Отчетливые пики всех перечисленных элементов были видны на спектрах при содержании их порядка первых сотых долей процента.

х) С учетом большого мертвого времени АИ-256-6 "живое" время измерений составляло ~ 1 мин.

Опытные работы показывают, что рентгеновский спектрометр с ППД может быть действенным инструментом полевого геолога и геохимика, а полупроводниковый Si(Li)-детектор с термоэлектрическим охлаждением, использованный в экспериментальной установке, может служить основой для разработки перспективной полевой аппаратуры для многоэлементного анализа геологических объектов при геолого-разведочных работах.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Мейер В.А. и др. Рентгеновский Si(Li)-спектрометр с термоэлектрическим охлаждением и перспективы его применения в разных областях. - В кн.: II Совещание по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народно-хозяйственных задач. Дубна, 1976, с. 79-86.
2. Мейер В.А., Филиппов М.М., Миловицкая Н.Л. Рентгенофлуоресцентный анализ серебряных руд в условиях естественного залегания. Вестн. Ленингр. ун-та, 1975, № 12, с. 53-57.

РАЗВИТИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ ДЛЯ РЕШЕНИЯ ГЕОЛОГИЧЕСКИХ ЗАДАЧ НА ПРИМЕРЕ ГЕОЛОГО-РАЗВЕДОЧНОЙ ЭКСПЕДИЦИИ ЯКУТСКОГО ГЕОЛОГИЧЕСКОГО УПРАВЛЕНИЯ

Б.С. Григоркин, Р.М. Файзуллин, Г.Д. Балакшин
Якутское территориальное геологическое управление

Развитие ядерной геофизики в геологии предопределяется и стимулируется постоянно растущими потребностями народного хозяйства в минеральном сырье.

Ниже рассматриваются вопросы, связанные с решением геологических задач методами ядерной физики при исследовании разрезов скважин, опробовании горных выработок на коренных и россыпных месторождениях и в практике аналитических работ.

1. Исследование разрезов скважин

Колонковое бурение с обычным извлечением керна на рудных месторождениях не всегда позволяет получить надежную информацию об исследуемых объектах. Поэтому имеется объективная необходимость в получении такого метода исследования скважин, который позволял бы "точно" определять местоположение рудного тела в разрезе, устанавливать его мощность, морфологию рудных подсечений и определять в первом приближении содержание металла в скважине в процессе бурения.

С учетом высокой избирательности рентгенорадиометрического метода (РРМ) ко всем важнейшим элементам основным методом исследования разрезов скважин среди рационального комплекса каротажа принят рентгенорадиометрический каротаж (РРК) на оловянных и сурьмяных месторождениях и нейтронный гамма-спектрометрический (НГК-С) в сочетании с РРК на ртутных месторождениях.

Месторождения и рудопроявления, на которых проводились работы, относятся к золото-антимонит-кварцевой формации. Основным рудным минералом является антимонит, жильным минералом — кварц.

Мешающие элементы в рудах практически отсутствуют. На стадии предварительной и детальной разведки интерес представляет руды с содержанием сурьмы более 1%. Максимальное содержание сурьмы достигает 6%. Отличительной особенностью месторождений является широкое развитие многолетней мерзлоты в верхней части разреза.

Основные задачи, которые определили практическое внедрение РРК, были решены на основе:

- создания составной модельной скважины с плоско-параллельными границами раздела (на этой скважине выполнена отработка режимов записи и определена разрешающая способность метода при определении параметров рудных тел);

- создания модельных скважин на естественных сурьмяных блоках весом по 150-200 кг (такие блоки были извлечены из подземной горной выработки на поверхности, колонками бурением в блоках пробурены скважины, в которых выполнен необходимый цикл исследований);

- теоретической оценки ошибки в определении привязки рудного тела в скважине;

- сопоставления мощностей рудных тел, установленных по РРК и бурению по скважинам, расположенным в наиболее изученном блоке системой подземных горных выработок;

- сопоставления мощности рудных тел и содержания сурьмы в них по всем другим скважинам по РРК и геологическому опробованию.

Каротаж выполнялся с помощью рентгенорадиометрического анализатора РРКА-1 с датчиком РРК МКС. Характеристическое излучение сурьмы возбуждалось с помощью мишени из окиси тербия, облучаемой, в свою очередь, источником тулий-170.

Основной методикой являлся способ спектральных отношений. Фон рассеянного излучения в области 84-94 кэВ, который использовался в качестве внутреннего стандарта-фона, создавался с помощью дополнительного источника тулий-170.

Погрешности РРК в определении мощности рудных интервалов и содержания в них сурьмы оценены по результатам основного и повторного каротажа 369 интервалов, вскрытых 43 скважинами. Максимальные погрешности (около 20% отн.) наблюдаются при исследовании интервалов мощностью менее 1 м и при содержании сурьмы

менее 2%. При больших содержаниях и для интервалов более 1 м расхождения в содержаниях составляют 5-10%, в мощностях не превышают 2%.

Результаты сопоставлений данных РРК и геологического опробования показали, что наилучшая корреляция наблюдается между площадью аномалии на диаграмме РРК и линейными запасами - коэффициент корреляции 0,984 при мощности 1 м и содержании более 8%. Для интервалов с содержанием сурьмы более 2% связь между площадью аномалий и линейными запасами можно считать линейной.

Расхождения между результатами РРК и геологического опробования близки к погрешностям самого геологического опробования, ошибку которого характеризует расхождение между основным и повторным опробованием керна. При мощностях интервалов более 1 м и для содержаний более 8% эти расхождения составляли около 20%.

По данным РРК и геологического опробования оценивались запасы по одному из блоков месторождения. Расхождения в запасах составили 5,6% относительных.

К настоящему времени с помощью РРК исследовано более 120 скважин. Опыт работ обобщен для рентгенорадиометрического каротажа на золото-сурьмяных месторождениях Якутии. Подчеркнем, что положительные результаты, изложенные выше, получены на основе учета конкретных геологических условий месторождения. Изменение геологических условий в пределах того же месторождения заставляет изменять методику решения геологической задачи ядерно-физическими методами. Так, применение стеночного датчика в наклонных скважинах глубиной до 300 м дает хорошие результаты на месторождениях жильного типа, с четкими границами раздела между рудными телами и вмещающей средой. На месторождениях штокеркового типа с вертикальными скважинами при бурении их всухую использование стеночного датчика не эффективно. Применительно к этому случаю ниже рассматривается пример.

По генетической классификации оловянное месторождение относится к грейзеновому типу касситерит-кварцевой формации, по промышленной - к штокерко-гнездовому типу оловянных месторождений.

Основным типом оловянного оруденения на месторождении являются прожилково-вкрапленные кварц-касситеритовые руды. По данным анализов практически все олово находится в окисной форме, сульфидное олово составляет 3-5% от проанализированных проб.

Основной промышленный минерал - касситерит. В качестве постоянных примесей содержится молибденит, вольфрамит, арсенопирит, халькопирит и др. В качестве примесей спорадических отмечается висмут, пирротин, барит, шеллит и др.

В целом, для рентгенорадиометрического метода опробования месторождения касситерит-кварцевой формации грейзенового типа являются благоприятным объектом. Оловянные руды имеют простой вещественный состав, элементы с атомным номером, близким к атомному номеру олова, в рудах отсутствуют, а зерна касситерита имеют небольшие размеры и распределены достаточно равномерно.

Испытания РРК проведены со стеночным датчиком скважинного снаряда в геометрии 2 \mathcal{L} и со специальным снарядом в геометрии 4 \mathcal{L} . В качестве источника первичного излучения используется изотоп гадолиний. Запись осуществлена на фоторегистраторе в масштабе 1:50 при скорости подъема скважинного снаряда 36 м/час.

Воспроизводимость результатов РРК со стеночным датчиком удовлетворительная в целом по стволу скважины; на минерализованных интервалах наблюдается смещение аномалий по оси скважины, изменяется ширина аномалий и их интенсивность по данным основных и контрольных наблюдений.

Воспроизводимость РРК на аномальных интервалах существенно улучшена применением скважинного снаряда в геометрии 4 \mathcal{L} . В данном случае датчик центрируется по оси скважины и информация собирается с поверхности всей скважины. Исследования показывают, что чувствительность датчика находится в тех же пределах, что и для стеночного датчика при условии сухих скважин.

С применением снаряда в геометрии 4 \mathcal{L} предоставляется возможность сопоставлять поинтервально результаты геологического и рентгенорадиометрического опробования, поскольку сопоставление осуществляется по усредненной информации с поверхности скважин. В РРК геометрии 4 \mathcal{L} резко уменьшилось влияние кавернозности. Так, каверны до 50мм не вносят существенного изменения в результатах аналитического параметра, между тем как интенсивность в характеристическом и рассеянном каналах снижается в 2-2,5 раза.

В техническом отношении выполнение РЧК со снарядами в геометрии 4Т стало проще, особенно в скважинах осложненных (кавернозных). Отсутствие выступающих прижимов повышает надежность работы при исследовании скважин осложненного технического состояния.

2. Рентгенорадиометрическое опробование (РРО) подземных горных выработок

В процессе проходки подземных горных выработок выполняются бороздвое опробование стенок и забоев выработки. Результаты анализов проб по выработкам используются в подсчете запасов металла по месторождению.

Методика РРО подземных выработок испытана на четырех важнейших рудных месторождениях. В частности, исследовании выполнены на оловорудном месторождении жильного типа со сложным составом руд, на месторождении ртути с мономинеральным составом киноварных руд, на золото-сурьмяном месторождении и штокервом месторождении олова.

Исследования на стенках горных выработок указанных месторождений осуществлялись на анализаторе РРША-1 по способу спектральных отношений. Методика опробования во всех случаях была примерно одинаковой. Датчик включает в себя три источника америций-241 активностью 100-200 мКи каждый для анализа на олово и сурьму и три источника кобальт-57 активностью по 10 мКи каждый. В качестве реперного источника используется цезий-137 (0,1 мг экв.радия) для автоматической регулировки усиления спектрометра. Аналитическим параметром является отношение скоростей счета в энергетическом интервале 25-27 кэВ и 34-36 кэВ для олова; 26-31 кэВ и 36-37 кэВ для сурьмы; 65-70 кэВ и 80-85 кэВ для ртути. Порог чувствительности установки составил 0,05-0,1% по олову; 0,1% по сурьме; 0,5% по ртути.

Практическое внедрение РРО осуществлено при разведке штокервового оловянного месторождения. Касситерит образует тонкую вкрапленность в метасоматитах, и макроскопически рудные минералы с трудом или совсем не отличимы от вмещающих пород.

В процессе проходки подземных горных выработок выполняется сплошное бороздовое опробование стенок и забоев для получения количественной характеристики содержания металла в руде. Выполнение анализов бороздовых проб требует значительных затрат времени. РРО ускоряет процесс оценки выработки и позволяет получить количественную характеристику по содержанию олова в разрезе.

В таблице I приводятся средние содержания олова по двум методам. Из таблицы видно, что разница в содержаниях олова, определяемых двумя методами, изменится в интервале 7-48% отн.

Таблица I.

Наименование выр.	Интервал в м	Среднее содержание олова в %		Разница в %-абс. ($C_2 - C_1$)	Ошибка в % отн. $2(C_2 - C_1)$ $C_2 + C_1$	Нормируемые допуски ГСЗ в % отн.
		РРО/ C_1 /	ГО/ C_2 /			
2	2	3	4	5	6	7
ОРТ I	0-5I	0,527	0,617	+0,090	12,5	7-15
ОРТ I	5I-76	0,0564	0,08	+0,0216	31,0	15-30
ОРТ I	76-100	0,0754	0,0463	+0,029	48,0	15-30
ОРТ 2	0-104	0,665	0,535	-0,130	22	7-15
Штрек (от № 15)	0-70	0,76	0,816	+0,056	7,1	7-15

Расхождения в содержании олова по методу РРО и ГО вызваны неравномерностью распределения олова в выработках. В целом результаты РРО по данным основных и контрольных измерений удовлетворительны и позволяют широко использовать РРО для оперативного получения количественной характеристики распределения металла в горной выработке и оперативного подсчета запасов олова. В настоящее время выполняется работа по РРО подземных горных выработок при разведке штотверкового месторождения.

3. РРО на месторождениях россыпного олова

При поисках и разведке месторождений россыпного олова в больших объемах проводятся горные выработки - копуши, ступы, скважины: колонкового (КВ) и удельно-механического (УМ) бурения.

На результатах геологического опробования выработок основывается оценка перспектив площади на оловоносность при поисках, а при разведке месторождения - ее промышленная ценность.

а) РРО в копушах

Полевые испытания метода для поисковых целей выполнены на делюпальной россыпи по копушам глубиной 0,4 м по сети (10-30)хх (10-20) м. Измерения в копушах проведены анализатором РРЛА-1 с измерителем отношения конструкции ЛТУ по дну копуши на площадке размером 1х1 м. Конструкция датчика и режимы измерения использовались те же, что и при опробовании подземных горных выработок.

В результате выполненной съемки выявлены две крупные аномалии северо-восточного простирания, отстоящие друг от друга на расстоянии 375 м и соответствующие рудным телам месторождения. Границы аномалий смещаются по склону в интервале 75-250 м. Пороговая чувствительность установки находится на уровне 0,01-0,015% по олову. Достоинством метода является оперативность получения результатов опробования (анализа) на месте залегания пород. Метод рекомендуется комплексировать с металлометрической и выхлопной съемками на перспективных площадях.

Геологические исследования по механическим ореолам рассеяния в оловоносных районах Якутии могут выполняться современными анализаторами серийного производства РРША-1, РРС-4-01, РРК-103 и т.д.

б) РРО выкладок шурфов

Проходка шурфов осуществляется рейсами, в среднем через 0,4 м, а извлекаемая из шурфа порода складывается в пирамидальные кучки вокруг шурфа, называемые выкладками. Методика геологического опробования выкладок предусматривает отбор пробы на промывку из каждой выкладки - одна шдовка (объем породы 0,02 м²) при отсутствии касситерита, две-три шдовки - при знаковых содержаниях, и пять-восемь - при весовых содержаниях.

Оперативное РРО выкладок в полевых условиях, предшествующее геологическому опробованию, относится к промежуточному этапу

опробования рудов и вместе с тем является важным элементом методики работ для экспрессного определения содержания олова в проходе, контроля качества промывки, оценки количества мелкой фракции касситерита и коэффициента извлекаемости при промышленной добыче металла.

Пороговое содержание 0,01% обеспечено датчиком с двухступенчатый способ возбуждения олова с тербисовой ишнейю и использованием цифрового измерителя отношения с накопителем информации и автоматической обработкой результатов измерения, позволивших проводить измерение аналитического параметра с ошибкой до 1%.

Исследования по выкладкам шурфов позволили оценить наличие олова в пробах без предварительной их промывки и получить содержание металла, хорошо совпадающее по классам содержания со средним результатом химического анализа (Х.А.) (см. таблицу ниже):

таблица 2

Диапазон содержания, %	Число поставлений	Среднее содержание в классе, %		Сред. отн. рес-хок-ление, %	До-пуск по классу, %	Примечание
		По Х.А. (C ₁)	По РРО (C ₂)			
0,01 - 0,02	24	0,017	0,020	-18	67	
0,021 - 0,05	12	0,038	0,031	16	55	

После промывки тех же проб и анализа черных шлихов получены содержания олова, которые, в среднем, в десять раз ниже в сравнении с РРО и ХА непромытых песков. Это связано с потерями касситерита при шлиховом опробовании за счет мелкой фракции, выносившейся со сливом при промывке песков, и нераскрытого касситерита, уходящего в отвал. Значительные расхождения характерны для деловальных россыпей, где раскрытый касситерит составляет незначительную долю касситерита, находящегося в породе.

РРО выкладок шурфов рекомендуется проводить для оперативного направления геологоразведочных работ.

Опыт работ РРО обобщен в методическом руководстве по опробованию россыпей, которое одобрено ИГиС и утверждено Министерством геологии СССР.

в) РРО стенок шурфов

На стадии поисково-разведочных работ на россыпных месторождениях в качестве технических средств разведки в большом объеме используются шурфовочные работы. На одном месторождении россыпного олова РРО исследовано 145 пог.м. стенок шурфов. Измерения на приборе выполнялись по периметру шурфа с расстоянием между точками измерения 20 см. Содержание олова по интервалу шурфа рассчитывалось как среднее арифметическое значение всех результатов измерения по определенной высотной отметке.

Установлено, что оперативное РРО стенок шурфов позволяет более точно оконтурить мощность рабочего пласта и интервалы в разрезе, оценить общие линейные запасы металла и своевременно вскрыть возможные ошибки, зависящие от технологии проходки шурфов.

г) РРО керно-шланговых проб прибрежно-морской россыпи олова.

Бурение скважин осуществлялось со льда с одновременной посадкой трубы с опережением обсадки над бурением до 4-8 м для перекрытия обводненных и неустойчивых пород в разрезе и предотвращения прорыва пилунов внутрь обсадной колонны.

Порода, разрушенная МКВ внутри обсадной колонны, ройсаш 0,4 - 0,5 м желопировалась в виде шлага из скважины. Из-за большого содержания мелкого касситерита порода плохо обогащается. Установлено, что 55% объема пробы приходится на мелкую фракцию (-0,071 мм), где сосредоточено до 34% общего содержания касситерита в пробе. Во избежание сноса касситерита мелкой фракции при промывке, резкого разубоживания пробы по содержанию полезного компонента и искажения потенциальных запасов в недрах, пробы месторождения после пробуртки анализировались рентгенорадиометрическим методом (РРМ) на анализаторах Минерал-3, РРМ-1.

В качестве примера приводятся средние содержания олова по пласту в скв. 44. В одном интервале глубин содержание олова составляет по РРМ 0,13%, по данным химического анализа — 0,14%; в следующем интервале глубин результаты РРМ и ХА совпадают (0,00%). Аналогичные результаты получены по другим скважинам. Данные РРМ использованы при подсчете запасов олова по месторождению.

4. Лабораторные методы исследования

К методам лабораторных исследований, принятым экспедицией на вооружение, относятся: рентгенорадиометрический, гамма-абсорбционный, ядерно-резонансный, гамма-метод (спектрометрия естественного гамма-излучения). Наибольшее распространение получил рентгенорадиометрический анализ. Метод применяется при поисках и разведке коренных месторождений олова, ртути, сурьмы, вольфрама. Особенно большой размах исследования получили на россыпных месторождениях олова, вольфрама.

На различных по времени этапах освоения аналитических работ исследование проб осуществлялось по методикам тонких, промежуточных и насыщенных слоев. Из-за малой представительности пробы методика тонких слоев не получила производственного внедрения. Методика анализирования в промежуточных слоях имеет ограниченное применение из-за низкой производительности. Методика предусматривает специальную подготовку проб для анализа (изготовление таблеток) и требует значительного времени на выполнение измерений на пробе. Наибольшее распространение получила методика анализирования проб в насыщенных слоях, которая не требует специальной подготовки проб для анализа, обеспечивает высокую представительность навески пробы (от 50г и более), выполняется в 1,5 — 2 раза и более быстрее в сравнении с методикой в промежуточных слоях при сохранении требуемой точности анализа с одновременным обеспечением более высоких порогов чувствительности анализа.

На аналитических работах используются такие анализаторы, как Минерал-2, Минерал-3, Квант-С, РРМА-1, РПСЧ-01 (Гагара), ФРАД-1, РРК-103 (Поиск). Анализаторы комплектуются спитильляционными детекторами. В качестве первичного излучателя используются радиоактивные источники тулий-170, америций-241, кобальт-57, селен-137. Комплектование приборов датчиками осуществляется

своими силами - в геофизической мастерской. Аналогичным путем изготавливаются штативы, которые позволяют расширить возможности приборов. В частности, когда отделением "Изотоп" не предоставляются необходимые радиоактивные источники (например, кадмий-109), приборы загружаются источниками тулий-170 и эти штативы позволяют обеспечить безопасные условия труда.

В зависимости от конкретных задач партии, оснащенные их аппаратурой для анализа проб, применяются методики спектральных отношений с фильтрами и без фильтров. Учет матричного эффекта производится вычитанием постоянных скоростей счета в обоих каналах спектрометра; составы определяются по измерениям на моделях (для РРМ с вычислительным устройством) или на основе измерений интенсивности обратно отраженных пробой бета-частиц источника стронций-90 на бета-приставке.

Пороговые чувствительности в порошковых пробах, полученные рентгенорадиометрическим методом по методике насыщенных слоев с бета-приставкой, составляют 0,003-0,005% на олово; 0,007% на сурьму, по методике промежуточных слоев с подложкой 0,01% на вольфрам; 0,04% на ртуть. В пробах, раздробленных до миллиметровой фракции, порог чувствительности РРМ по методике комплексных гамма-бета измерений в насыщенных слоях составил 0,01% на олово; 0,03% на сурьму; 0,08% на вольфрам; 0,02% на ртуть (по интенсивности характеристического излучения). В пробах естественного гранулометрического состава пороговая чувствительность на олово оценивается 0,01%.

Гамма-абсорбционный метод рассчитан для анализа проб с высоким содержанием сурьмы и олова (концентраты). В отличие от флуоресцентного метода градуировочные графики абсорбционного метода не выполняются при увеличении содержания сурьмы в антимоните вплоть до 70%. Время, затрачиваемое на измерение пробы, составляет 1,5 - 2 мин. Воспроизводимость результатов анализа по двум парным измерениям по разным классам содержания укладывается в допуски внутрилабораторного контроля. Пороговыми содержаниями данный метод не лимитируется, им анализируются пробы с содержанием сурьмы от 1-2% и выше.

Гамма-метод, основанный на спектрометрии естественного гамма-излучения, используется при анализе золотосодержащих глиховых проб по их естественной радиоактивности на торий, уран и калий. Пороговая чувствительность установки составляет: 0,2% на калий; $1,2 \cdot 10^{-4}\%$ на уран; $0,9 \cdot 10^{-4}\%$ на торий. Ошибка воспроизводимости составила в среднем около 13% по калию, 20% по урану и 10% по торию.

Объемы аналитических работ сосредоточены в производственных подразделениях экспедиции. Объемы работ нарастают из года в год. Только в 1977 году проанализировано 100000 проб различного целевого назначения. К концу десятой пятилетки планируется создать ядерно-геофизические подразделения во всех геологических подразделениях экспедиции (в т.ч. съёмочных партиях).

Основным достоинством методов ядерной геофизики нужно считать их высокую оперативность и достаточно высокую точность анализов.

Из приведенного видно, что преимущества ядерно-физических методов в сравнении с классическими методами заключаются в экспрессности анализа и приближении лабораторной базы к участкам полевых работ. Отметим, что анализаторы имеют свои недостатки, которые связаны с ограниченными возможностями аппаратуры. Одно- и двухканальные анализаторы, как правило, настраиваются на определяемый элемент. Определение второго, третьего и т.д. связано с использованием других источников, перестройкой аппаратуры. В экспедиции пока не хватает аппаратуры, что затрудняет работу лабораторий в условиях большого потока проб. Между тем имеется практическая потребность в анализах проб на разведываемых месторождениях не на один элемент, а на группу элементов. При одновременном облучении пробы регистрация спектра рентгеновского излучения на 10-15 элементов является актуальной задачей.

Так, в 1977 году при содействии академика Г.Н. Флерова Янской экспедицией начаты работы по совершенствованию рентгенометрического и нейтронно-активационного методов анализа и ускорению внедрения достижений ядерной физики при поисках и разведке полезных ископаемых в Северо-Восточной Якутии.

В этом же году по методике ЛЯР ОМЯИ был выполнен анализ 315 геологических проб ИГГУ рентгенорадиометрическим методом.

Пробы анализировались на 800-канальном анализаторе "Nokia" с полупроводниковым кремниевым детектором (ШД) с разрешением детектора 190 эВ на линии 6,4 кэВ ($Fe K_{\alpha}$). Источником возбуждения служил кадмий-109 общей активностью 25 мКи (пять источников по 5 мКи каждый источник).

Анализ проб по K_{α} выполнен на следующие элементы: калий, кальций, титан, ванадий, хром, марганец, железо, кобальт, никель, медь, цинк, мышьяк, рубидий, стронций, иттрий, цирконий, ниобий, молибден ($Z = 19-42$). С тем же источником, одновременно, анализ выполнен на тяжелые элементы по L_{α} линии - свинец, таллий, висмут, вольфрам, золото, ртуть, гафний.

Элементы в начале спектра (калий, кальций) определены от десятых долей процента и выше. Чувствительность в 0,01% устанавливается для марганца, свинца, вольфрама, висмута; 0,001% регистрируется для ниобия, молибдена, мышьяка, никеля, иттрия; 0,0005% и менее регистрируется для стронция, меди, германия, циркония.

Задача достижения минимальных пороговых содержания по элементам в данном случае не ставилась. Приведенные данные получены на эталонных пробах. Методические возможности по улучшению чувствительности по элементам имеются, и в этом направлении исследования необходимо продолжить.

К числу важнейших задач следует отнести также анализ геохимических проб. Пороговые чувствительности, которые удовлетворяют геохимиков, обеспечиваются созданием мощных излучающих устройств. Сочетание мощного излучателя с использованием многоканального анализатора на ШД позволит решить все практически важные задачи по анализу геологических проб.

ЭЛЕМЕНТНЫЙ АНАЛИЗ НА ЭЛЕКТРОСТАТИЧЕСКОМ ГЕНЕРАТОРЕ ЭГ-5
ОБЪЕДИНЕННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
Э.В.Васильева, Г.Ф.Жеронкин, Т.С.Зварова, С.Илиев, Г.М.Осетинский
М.С.Совински, В.Г.Тишин

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

На пучках ускоренных ионов H , 4He , 3He , ${}^{14}N$ в интервале 2-4 МэВ разработаны два взаимно дополняющих метода анализа элементного состава веществ. Один из них основывается на измерении упругого рассеяния этих частиц на большие углы, другой - на измерении рентгеновского излучения при бомбардировке исследуемых образцов пучком протонов. Оба метода обладают рядом достоинств. К ним относятся: а) высокая чувствительность определения элементного состава; б) быстрота получения информации об элементном составе; в) измерение не приводит к разрушению образцов; г) сами измерения, в основном, не вносят искажения в элементный состав многокомпонентной смеси.

1. Элементный анализ методом упругого рассеяния.

Схема опыта представлена на рис. 1. Как видно из рисунка, пучок ускоренных ионов, пройдя систему коллиматоров, попадает на мишень, установленную в центре камеры рассеяния (6). Мишень (5) изолирована от корпуса камеры и присоединена к интегратору тока. Для тонких мишеней, когда пучок проходит мишень, ток пучка измеряется цилиндром Фарадея, электрически соединенным с ней (на рис. не показано). Рассеянные частицы детектируются кремниевым поверхностно-барьерным детектором, который может быть расположен под углом $30-176^\circ$. Энергетическое разрешение спектрометрического тракта для протонов, ионов 3He и 4He составило ~ 30 кэВ, а для детектирования ионов ${}^{14}N \sim 80$ кэВ. Число атомов мишени (Nt) ат/см² определялось по выходу упруго рассеянных частиц, который тождествен площади (A) энергетического спектра, наблюдаемого на многоканальном анализаторе импульсов. Для мишени, у которой $\Delta E \ll E$, $A = Q \delta(E) \Omega (Nt)$, где Q - число ионов, падающих на мишень; $\delta(E)$ - дифференциальное сечение упругого рассеяния. Оно может быть взято Резерфорд-

ским, если ядерным рассеянием можно пренебречь. Ω - телесный угол; Nt - поверхностная плотность частиц в ат/см²; t - толщина мишени, N - число атомов в см³.

При исследовании сравнительно толстых образцов ($> 5000 \text{ \AA}$) оказалось, что форма энергетического спектра имеет плав, высота которого определяется уравнением вида ^{1/1, 2/2, 3/3/}

$$H = Q \Omega \delta N \frac{\delta E}{[S]},$$

где $[S]$ - параметр энергетических потерь при упругом рассеянии. Он может быть определен экспериментально из уравнения вида $\Delta E = [S]t$, где ΔE - разность энергий частиц, падающих на слой и выходящих из него. Эта величина определяется на половине высоты пика энергетического спектра. δE - энергетическая ширина одного канала. Очевидно, $A = H \frac{\Delta E}{\delta E}$.

В настоящей работе в качестве рассеиваемых частиц использовались ионы ³He, ⁴He и ¹⁴N. Основное преимущество в использовании ионов азота определяется большим сечением упругого рассеяния по сравнению с рассеянием ионов гелия-3 и гелия-4 (сечение увеличивается ~ в 12 раз), что, естественно, приводит к увеличению чувствительности метода. Использование ионов

¹⁴N создает преимущество при определении примесей тяжелых элементов в мишенях с мало отличающимися друг от друга атомными массами, так как кинематические факторы для элементов с близкими друг к другу атомными массами будут больше отличаться друг от друга, чем при рассеянии ⁴He. Однако это преимущество ослабляется за счет худшего разрешения детектора для рассеянных ионов ¹⁴N.

Методом упругого рассеяния определялось:

1. Число атомов мишеней ²⁸Si, ³²S, ⁴⁶T, ¹²C, используемых при исследовании ядерных реакций.

2. Число атомов Pb, Au, U, имплантированных в подложках из ⁹Be, ²⁸Si, на уровне ~ 10¹² ат/см².

3. Состав (%) пленок из Nb-Ti, Cd-Tl и "Т-МОП-структур". Эти работы успешно проводились сотрудниками ОНМУ ^{4, 5/}

П. Определение элементного состава методом измерения рентген-флуоресцентного излучения ^{6/}.

Схема опыта также представлена на рис. I. Как видно из рисунка, пучок протонов попадает на многопозиционную мишень (М), пройдя три графитовых коллиматора (З^А, З^В, З^С). Перед

входом в диафрагму Z^0 (диаметр диафрагмы 6 мм) пучок расфокусируется углеродной фольгой толщиной $150 + 200$ мкг/см², обеспечивая тем самым равномерное распределение тока, падающего на мишень. Фольги углерода укрепляются на кронштейне (с 5 позициями), который устанавливается в направлении, перпендикулярном пучку, обеспечивая установку на пути пучка одной из пяти фольг. Анализируемая площадь пучка определяется диаметром съемных диафрагм коллиматора Z^B и может составлять 0,8 - 10 мм². Длина коллиматора 80 мм. Расстояние выходной диафрагмы до центра мишени 30 мм. Определение числа частиц, падающих на мишень, аналогично указанному выше.

Под углом 90° по отношению к пучку на расстоянии 4,5 см от центра мишени находится кремниевый поверхностно-барьерный детектор с дрейфом лития. Диаметр детектора 6 мм, толщина 4 мм. Импульсы от детектора через предусилитель, усилитель и выравниватель базовой линии ("Baseline restorer", тип П102, фирмы "Polon") попадают на многоканальный анализатор импульсов типа "DIDAC" или измерительный центр для последующей их обработки на анализаторе АИ-4096, записи на графопостроитель и на магнитно-запоминающее устройство ЭВМ БЭСМ-4. Основная особенность предусилителя - использование импульсной отрицательной обратной связи. Его схема мало отличается от опубликованной в работе [7]. Разрешения спектрометра и положение спектров не меняются при скорости счета до 10000 имп/с. При этом число импульсов однократных наложений, измеренных на линии C_2 , не превышает 0,5%. Между выходным окошком камеры и детектором устанавливается подвижный кронштейн с двумя фильтрами (70 мм майлара и 250 мкм ^{28}Si). Энергетическое разрешение спектрометра для линии $I_{3,96}$ кэВ от ^{241}Am составляет 270 эВ. С целью расширения возможностей элементного анализа и увеличения надежности интерпретации результатов одновременно с измерением рентгеновских спектров измеряются спектры упруго рассеянных протонов (см. рис. I). Для количественных исследований элементного состава были изготовлены эталоны Ca, Ti, Ge, Se, Nb, Cu, Ag, Cs, Sm, Au, Pb с числом атомов $\sim 10^{17}$ ат/см². Они получены методом распыления в вакууме на подложку из спектрально-чистого кремния толщиной 200 микрон. Число атомов в мишенях определялось по упругому рассеянию протонов и ионов ^3He методом, указанным ранее. Ошибка в определении числа атомов эталонной мишени не превышала 8%.

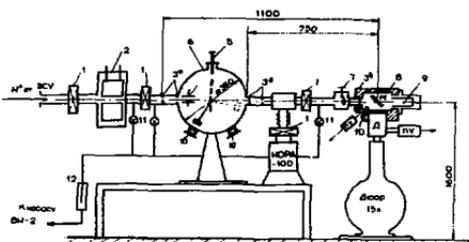


Рис. 1. Схема опыта. 1 - вакуумные шибера, 2 - ловушка жидкого азота, 3а, б, в - коллиматоры, 4 - отклоняющие пластины, 5 - мишень, 6 - камера № I, 7 - кварцевый экран, 8 - камера рентгенфлуоресцентного анализа, 9 - цилиндр Фарадея, 10 - детекторы типа ПИД.

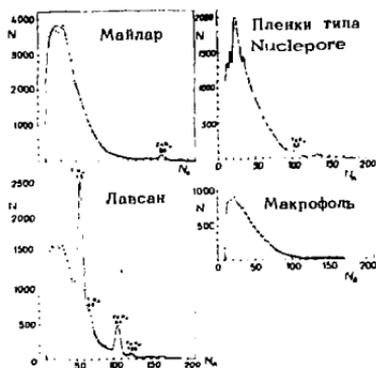


Рис. 2. Энергетический спектр рентгеновских лучей при бомбардировке майлара, макрофоль, пленки типа Nuclepore и лавсана. N - относительный счет, N_k - каналы анализатора, $E = 3$ МэВ, число частиц, падающих на мишень $Q = 3,8 \cdot 10^{11}$.

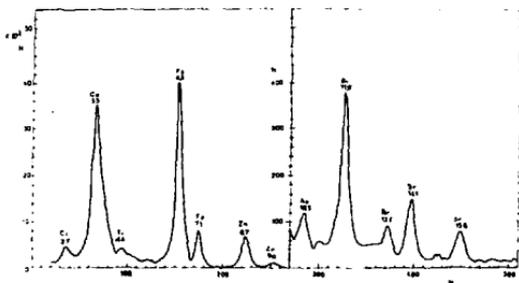


Рис. 3. Рентгеновский спектр, полученный при облучении протонами с $E=3 \text{ МэВ}$ тонкой мишени из смолы марки ВП-3П-Г-16, насыщенной гидротермальным рассолом на полуострове Челекен. $\Phi_p = 3,8 \cdot 10^{11}$ частиц.

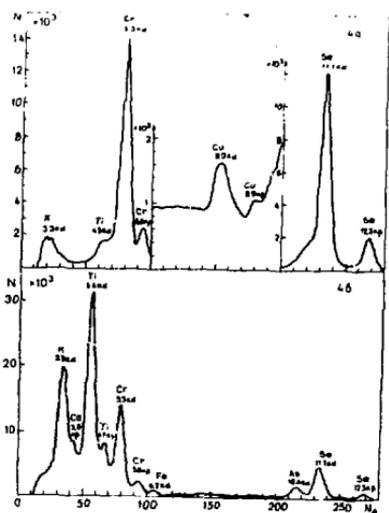


Рис. 4. Рентгеновский спектр при облучении протонами кристалла граната (рис. 4а). Рис. 4б - этот же материал, изготовленный в виде пленки на слатале. $\Phi_p = 3,8 \cdot 10^{11}$ частиц.

Подготовка методики включала: а) определение эффективности рентгеновского спектрометра; б) исследование фона материалов, которые используются в качестве подложек для тонких мишеней (рис.2). В качестве примера на рис. 3 представлен рентгеновский спектр элементов, находящихся в смоле (марки ВР-ЗП-Г-16), насыщенной гидротермальным рассолом с полуострова Челекен. На рис. 4а,б представлены спектры полупроводникового материала. Спектр (рис.4а) получен для монокристалла граната. Рис.4б - рентгеновский спектр этого же материала, изготовленного в виде тонкой пленки на ситалле. Сравнение этих спектров может оказаться полезным для разработки технологии изготовления тонких образцов.

Отметим, что, если площадь облучения мала, с помощью рентген-флюоресцентного анализа можно проводить детальные микро-аналитические исследования на поверхности и по глубине образца. В этой связи большую перспективу имеет использование для этой цели протонного микрозонда. В мире сейчас работают ускорители типа ЭСУ, имеющие пучки протонов размером 1 - 10 микрон. В ОИЯИ также ведутся работы по созданию пучка такого типа. Кроме того, в настоящий момент ведутся дальнейшие работы по совершенствованию метода рентген-флюоресцентного анализа и использования пучков ионов ^{14}N и других тяжелых ионов для расширения возможностей количественного анализа веществ.

Авторы благодарны И.М.Франку и В.И.Лушикову за большое внимание и поддержку в работе, а также сотрудникам ОНМУ ОИЯИ Н.И.Балалыкину и А.В.Скрипнику за приготовление мишеней методом распыления.

Литература

1. V.Mitchell and H.L.Eschbach. Nucl.Instr. and Meth. 149 (1968) 727-733.
2. W.Chu et al. Thin Sol.Films 17 (1973) 1.
3. J.Feng et al. Thin.Sol.Films 19(1973) 195.
4. Ю.Бух, Н.И.Балалыкин, Г.М.Осетинский, Ван Сын Чан. Сообщение ОИЯИ, Р14-10021, 1976 .

5. Ю.Бух, Н.И.Балалыкин, Д.А.Мурadian, А.В.Скрябиник.
Сообщение ОИЯИ, Р14-10446, 1977 .
6. S.Johanson and T.Johanson. Nucl.Instr. and Methods 137
(1976) 473-516.
7. А.И.Зубарева, С.Илиев, В.Ф.Кушнирук, А.В.Рыхляк, З.Г.Субботин, Ю.П.Харитонов. ИТЭ В 3 (1978) 50.

!

МИКРОАНАЛИЗ КИСЛОРОДА В ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ МАТЕРИАЛАХ С ПОМОЩЬЮ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

Г.Класес, У.Крейсиг, Р.Гречелл, М.Фельске

Центральный институт ядерных исследований АН ГДР, Россендорф

1. Введение

Применение ядерных реакций для микроанализа легких примесей в тяжелом субстрате при низких энергиях падающего пучка оказалось очень успешным, как показали, например, исследования Амсела и др.^{1/2}. Самое большое преимущество этого метода заключается в высокой селективности при соответствующем выборе экспериментальных параметров. Благодаря увеличению кулоновского барьера с ростом атомного номера субстрата сечение для интерферирующих реакций оказывается часто очень малым или даже пренебрежимым. Кроме того, в основном значения Q для реагирующих атомов субстрата с одинаковыми вторичными частицами отличны друг от друга и, таким образом, возможно их энергетическое разделение. В частности, это выполняется, если интерес представляет только концентрация примесей в тонких пленках или в приповерхностных слоях твердых тел, поскольку энергия эмиттируемых частиц в этих случаях хорошо определена из кинематики. Цель данной работы заключается в определении абсолютного количества атомов кислорода в тонких приповерхностных слоях кремния в объеме эпитаксиально выращенного фосфида галлия. Среди принципиально возможных ядерных реакций для микроанализа кислорода рекомендуется реакция $^{16}O(\rho, \alpha)^{15}N$, если возможно обогащение или введение меченых атомов. Если нет, то реакция $^{16}O(\alpha, p)^{17}O$ более предпочтительна, т.к. естественная концентрация ^{16}O составляет только 0,2%.

Эти реакции нашли использование в вышеназванных исследованиях. Постановка эксперимента, специфические проблемы и результаты детально будут обсуждены ниже.

2. Постановка эксперимента

Экспериментальная установка для измерения ядерных реакций изображена на первом рисунке. Хорошо отколлимированный пучок заряженных частиц 2-МэВ генератора Ван-дер-Граафа попадает на образец, установленный на трехосном гониометре в камере рассеяния. Турбомолекулярный насос обеспечивает в камере вакуум $5 \cdot 10^{-6}$ Тор. Загрязнение углеродом образцов сильно понижается с помощью LM_2 -ловушек. Эмиттируемые из образца частицы регистрируются в обратном направлении поверхностно-барьерным детектором с соответствующей электроникой для многоканальной спектроскопии. Прецизионный интегратор тока контролирует ток, проходящий через изолированную мишень. Поскольку спектры нормируются на заряд, необходимо устройство подавления вторичных электронов. Чтобы не допустить попадания большого количества упруго рассеянных первичных частиц на детектор, предусмотрена возможность установки перед детектором заземленной и покрытой алюминием майларовой фольги соответствующей толщины. С помощью описанного базисного устройства достигается оптимальная чувствительность детектирования продуктов ядерной реакции при определенном подборе следующих экспериментальных параметров:

- энергии падающего пучка,
- угла между пучком и поверхностью мишени,
- угла детектирования,
- толщины тормозящей фольги,
- толщины чувствительного слоя детектора.

Необходимо отметить, что во избежание в некоторых случаях неверных результатов необходима совершенная экспериментальная техника.

3. Проблемы и результаты

3.1. Измерение коэффициентов имплантации атомов отдачи

Во время имплантации ионов в кремний через пассивированные слои окиси кремния первичные ионы сталкиваются с атомами окиси, образуя каскады столкновений. Некоторые из этих атомов приобретают достаточную энергию, для того чтобы пройти через границу между поверхностным слоем и подложкой и прийти в состояние покоя. Имплантация атомов отдачи кислорода, таким образом, может влиять на физические свойства приповерхностных областей полупроводника.

Задача состояла в том, чтобы определить коэффициент имплантации атомов отдачи, т.е. число имплантированных атомов отдачи на единичный первичный ион, в зависимости от толщины поверхностной пленки и от параметров имплантации. Для экспериментов летучие атомы ^{18}O вводились методом анодного окисления кремния. Таким образом, на $p\text{-Si}$ -подложке с сопротивлением порядка $10\ \text{Om}\cdot\text{см}$ создавались слои SiO_2 толщиной от 50 до 800 Å. После отжига в сухом азоте (10 мин., 450°C) с целью выведения воды из окиси толщина слоя последней измерялась с помощью интерференционной и эллипсометрической техники. Отношение $^{16}\text{O}/^{18}\text{O}$ определялось методом обратного рассеяния каналированных ионов. На рис. 2 показан один из спектров. Четко видны два пика, соответствующие рассеянию на ^{16}O и ^{18}O атомах. Отношение количества $^{16}\text{O}/^{18}\text{O}$ просто определяется отношением площадей под пиками.

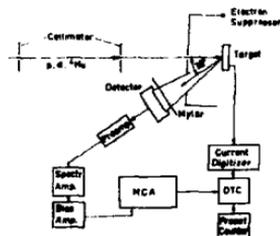


Рис. 1. Принципиальная схема экспериментального устройства.

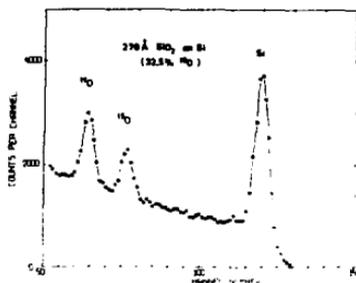


Рис. 2. Энергетический спектр обратно рассеянных I-MeV ^4He -ионов при каналировании в III-направление.

После бомбардировки образцов ионами фосфора с энергией 30 КэВ при разных дозах окисная пленка снималась травлением. Количество имплантированных атомов отдачи ^{18}O было измерено при помощи реакции $^{18}\text{O}(p,\alpha)^{15}\text{N}$, сечение которой показано на рис. 3. Поскольку атомы кислорода распределены в приповерхностном слое кремния толщиной порядка 200 Å, потери энергии протонов в этом слое составляют около 1 КэВ. Использование узкого резонанса при 628 КэВ затруднительно, поэтому в работе использовались протоны с энергией 700 КэВ. Эмиттируемые частицы детектировались под углом 160° . Для торможения упруго рассеянных протонов была исполь-

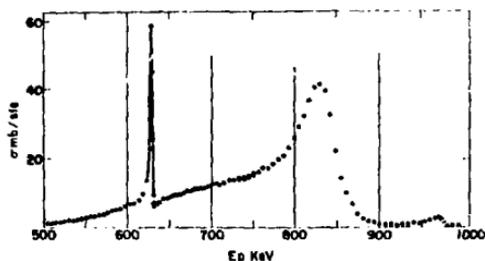


Рис. 3. Сечение реакции $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ для угла детектирования 165° (из [17]).

зована майларовая фольга толщиной 8 мкм. При этом пик регистрируемых α -частиц переместился с 3,35 на 2 МэВ.

Из рис. 4 видно, что фон в районе α -пика, полученный от слоя SiO_2 толщиной 600 Å с 32,5%-ым обогащением ^{18}O , практически отсутствует. Предел детектирования атомов ^{18}O оказался ниже 10^{13} см^{-2} . На рис. 5 изображены полученные коэффициенты имплантации атомов отдачи в зависимости от толщины окисной пленки. Там же приведены рассчитанные по теории распыления Зигмунда [2] аналогичные зависимости при разных энергиях имплантации ионов фосфора. Было найдено, что максимальный коэффициент имплантации лежит в районе средней глубины распределения радиационных повреждений.

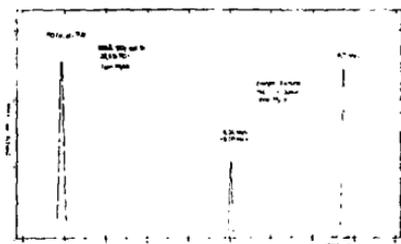


Рис. 4. α -пик из реакции $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ на обогащенном SiO_2 -слое толщиной 600 Å и калибровочные линии Th и U источника.

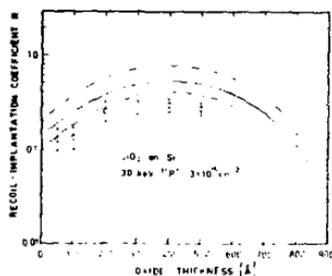


Рис. 5. Коэффициент имплантации атомов отдачи кислорода как функция толщины окисного слоя для $3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ ^{31}P ионов с энергией 30 КэВ.

3.2. Концентрация кислорода в эпитаксиальном фосфиде галлия

Как известно, наличие кислорода в фосфиде галлия ведет к возрастанию неизлучательной рекомбинации и вследствие этого — к понижению коэффициента полезного действия светодиодирующих приборов. В связи с этим важно знать объемную концентрацию кислорода в эпитаксиально выращенных слоях фосфида галлия при различных процессах.

Для микроанализа кислорода применялась ядерная реакция $^{16}\text{O}(\alpha, p)^{17}\text{O}$. Сечение этой реакции при угле детектирования 150° имеет широкий резонанс при 970 КэВ (см. рис. 6). Мы использовали более

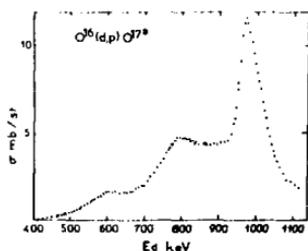


Рис. 6. Функция возбуждения $^{16}\text{O}(\alpha, p)^{17}\text{O}$ (из [17]).

высокую энергию дейтронов (1,1 МэВ), чтобы отделить вклад объемного кислорода, который усиливается резонансом, от вклада поверхностной окиси. В отличие от этого в реакции $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ интерференцией от матричных реакций нельзя пренебречь. Хотя кулоновский барьер галлия при использованной энергии дейтронов достаточно высок, но сечение (α, p) -реакции с ним только на три порядка меньше аналогичного сечения для ^{16}O , и потому минималь-

ная измеримая концентрация кислорода составляет только 10^{19} см^{-3} . Повышение чувствительности детектирования в пять раз достигалось путем каналирования пучка. В этом случае выход от атомов фосфора, находящихся в узлах решетки, уменьшается, хотя выход от атомов кислорода, находящихся в междоузлиях, остается неизменным.

Продукты реакции детектировались под углом 150° , а упруго рассеянные дейтроны тормозились покрытой алюминием майларовой фольгой толщиной 17 мкм. Оптически чистый кварц, покрытый 500-Å слоем алюминия, служил стандартом для вычисления абсолютной концентрации. На рис. 7 показаны спектры от одного из образцов, полученные при падении в произвольном направлении и вдоль оси. Из этих кривых ясно видно, что пики, относящиеся к реакциям с фосфором (справа на рис. 7), практически исчезают в случае каналирования и что площади под пиками поверхностной окиси остаются неизменными, а фон в интересующем энергетическом интервале (где

появляются протоны объемного кислорода) сильно понижается. Концентрация кислорода в этом образце составила $1,1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$.

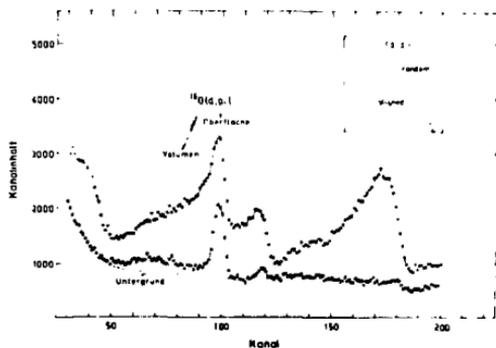


Рис. 7. Спектры протонов (d, p) -реакции при $E_d = 1,1$ МэВ. Верхняя кривая для произвольного, нижняя - для ориентированного направления.

Литература

1. G.Amsel, J.P.Nadaï, E.D'Artemare, D.David, E.Girard und J.Monlin. Nucl.Instr. and Meth., 92 (1971), 481.
2. P.Sigmund. Phys.Rev., 184 (1969), 383.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ПРИМЕСЕЙ В ПОЛУПРОВОДНИКОВОМ
КРЕМНИИ С ПОМОЩЬЮ АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА НА ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦАХ

М.Л. Бёттгер, Д. Бирнштайн, В. Хельбиг

Центральный институт ядерных исследований АН ГДР, Россендорф

Примеси углерода в кремнии снижают время жизни носителей заряда, представляют собой формователи зародышей дислокации, а также препятствуют превращению поликристаллического материала в монокристаллический. Предельная концентрация углерода для выращивания монокристаллов составляет $4 \cdot 10^{16}$ ат/см³. Чувствительность классических химических методов анализа на углерод — около $5 \cdot 10^{17}$ ат/см³. Исходя из ранних работ Шюстера^[1] и Поцаки^[2], мы разработали метод, основанный на активации углерода дейтронами по реакции $^{12}\text{C}(\alpha, n)^{13}\text{N}$ и ионами гелия-3 по реакции $^{12}\text{C}(^3\text{He}, p)^{13}\text{C}$ на циклотроне. При этом возникли некоторые затруднения, специфичные для углерода.

Сначала использовался метод без радиохимического выделения. Кремниевые диски шлифовались, стравливались на 200 мкм и облучались дейтронами с энергией 4,25 МэВ в течение 30 мин. После нового травления измерялась позитронная активность по аннигиляционным квантам. Период полураспада измеряемого нуклида ^{13}N ($t_{1/2} = 10$ мин) лежит между периодами полураспада активностей основы ^{30}P (β^+ , 2,5 мин) и ^{31}Si (β^- , 157 мин). Кривая распада анализируется на ЛКМ. Чувствительность этого метода порядка $1 \cdot 10^{16}$ ат/см³ при $\sigma = 30\%$.

Дальнейшего увеличения чувствительности и улучшения воспроизводимости мы достигли путем химической обработки облученных образцов для выделения измеряемых нуклидов ^{13}N и ^{13}C , оптимизации плотности тока ионов и сравнительного облучения частицами ^3He . Выделение осуществлялось по Энгельманну^[3] методом горячей экстракции в потоке гелия. Образец индукционно нагревался до $T = 1200^\circ\text{C}$ в расплаве сурица и триоксида бора. Газовая смесь очищалась от посторонних газов и нуклидов известными методами. ^{13}N адсорбировался на 5-А молекулярном сите при охлаждении жидким азотом, а его активность определялась на спектрометре гамма-гамма-совпадений.

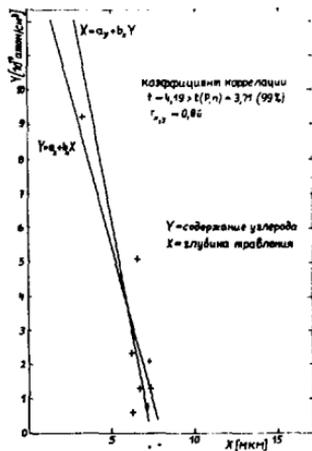


Рис. 1. Кажущееся содержание углерода в зависимости от глубины травления.

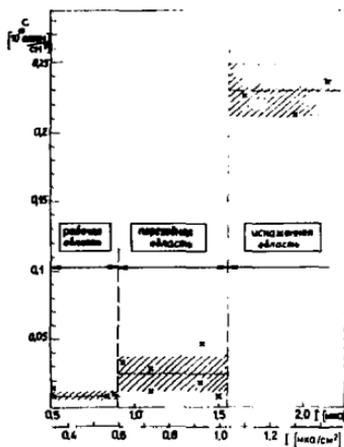


Рис. 2. Кажущееся содержание углерода в зависимости от тока ионов.

Химическая обработка увеличивает чувствительность, так как активность оснория не оказывает больше влияния на точность измерения. Точность измерения ограничивается только фоном. Кроме того, сокращается время выдержки, так как при измерении нет необходимости достигать оптимального соотношения активностей между ^{23}N и $(^{30}\text{P} + ^{31}\text{Si})$. С повышением энергии дейтронов до 10,65 МэВ увеличивается глубина активации в 5 раз. Из зависимости глубины активации образца от энергии частиц вытекает требование о полной однородности исследуемого материала.

Обычно в высоковакуумной аппаратуре при ионном облучении поверхности на ней осаждаются полимерные слои из углеводородов. Часть этих атомов конным пучком внедряется в субстрат, что приводит к завышению определяемой концентрации атомов на несколько порядков. Для исключения этого эффекта после облучения образцы травилась до глубины 15–20 мкм. На рис. 1 нанесено кажущееся содержание углерода по таблице травления и получена функциональная зависимость с достоверной вероятностью в 90%. Несмотря на достаточную глубину травления в кремниевых образцах с низким содержанием углерода иногда все-таки обнаруживалось большое кажущееся содержание углерода.

Сравнение с методом инфракрасного поглощения показало, что наш метод имеет холостые опыты из-за образования микрогравий на поверхности мишени при термических нагрузках в процессе облучения. Так как при активационном анализе максимально возможная чувствительность пропорциональна активности и, следовательно, току частиц, то в ранних исследованиях выбирался ток $I = 1,6 \text{ мкА/см}^2$ (максимально возможный по условиям тепловода). Мы исследовали зависимость определяемого содержания углерода от ионного тока в пределах от 0,3 до $1,6 \text{ мкА/см}^2$. Из рис. 2 видно, что измеренные величины в зависимости от тока ионов можно разделить на три класса.

До тока $0,6 \text{ мкА/см}^2$ при наших экспериментальных условиях искажений не наблюдалось. Очевидно, измеренные величины соответствуют реальному содержанию. В переходной области от 0,6 до 1 мкА/см^2 часть измеренных величин не искажена, часть увеличена в 2–5 раз. Выше 1 мкА/см^2 постоянно наблюдается завышение измеренных величин. Отклонение статистически достоверно. Множество сравнительных измерений ИК-методом, выполненных Вруком^{4/} из ЦИЭФ в Берлине, показало хорошее соответствие для материалов, полученных методом

зонной планки (рис. 3). Величины в последней графе получены путем радиохимического выделения с оптимальным ионным током. Видно хорошее соответствие. Из опытов 9, 10, 11 видна более высокая чувствительность активационного метода, которая в наших условиях исследований составляла при облучении дейтронами $3 \cdot 10^{14}$ ат/см³ и для ионов гелия-3 - $1 \cdot 10^{14}$ ат/см³.

Наши исследования показывают, что в противоположность принятому на практике активационному анализу нужно устанавливать не максимальную, а оптимальную величину тока. При этом устраняется термическое разрушение поверхности образца в процессе облучения.

образец	актив. метод без разрушения	метод инфракрас- ного поглощения	актив. метод с радиохим. выделением	частицы
	I - 2,5 мка		I = 0,5 мка	
1 поликрист.	1,8 (17)	7 (16)	1,4 (17)	} ³ He d
2 "	1,8 (17)	7 (16)	1,8 (17)	
3 Чокральский	1,6 (17)	12 (17)	3,7 (16)	
4 зонн. планка	2,2 (17)	4 (16)	3,6 (16)	
5 "	1,8 (17)	2 (16)	1,4 (16)	
6 Чокральский	1,6 (17)	4 (16)	3,5 (16)	
7 "	2,2 (17)	8 (16)	1,0 (17)	
8a } Чокральский	∕	3 (16)	3,8 (16)	
8б }	∕	5 (16)	4,0 (16)	
9 зонн. планка	3,4 (16)	< 1 (16)	5,8 (15)	
10 "	9,8 (16)	< 1 (16)	1,3 (15)	
11a } зонн. планка	∕	< 2 (16)	4,9 (14)	
11б }	∕	< 2 (16)	5,0 (14)	

Рис. 3. Сравнительное определение при различных значениях тока ионов и ИК-методом.

Литература

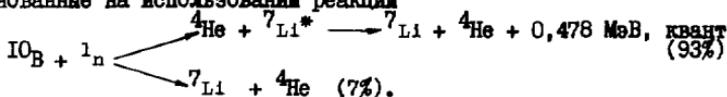
1. E. Schuster, K. Wohlleben
Proc. of the 2nd Conf. on pract. aspects of act. analysis
with charged particles,
Liege (Belgien), Sept. 21-22, 1967, 45-63
2. T. Nozaki, Y. Yatsurugi, N. Akiyama
Journ. Radioanalyt. Chem. 4 (1970) 87-98
3. A. Marschal, I. Gosset, C. Engelmann
Journ. Radioanalyt. Chem. 8 (1971) 243-255
4. M.L. Böttger, D. Wruck
Isotopenpraxis, in Vorb.

**ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПУЧКОВ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ
ИЗУЧЕНИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ АТОМОВ БОРА В МАТЕРИАЛАХ**
Я. Богач, Я. Долаж, А. Надь, В. М. Назаров, А. Сабо, Э. Шереш
Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Центральный институт физических исследований,
Будапешт

Введение

С целью изучения распределения атомов бора в полупроводниках, тонких пленках и биологических объектах в ЛНФ ОИЯИ совместно с ЦИФИ (Будапешт) разработаны экспериментальные методы измерений, основанные на использовании реакции



Распределение атомов бора в приповерхностных слоях твердых тел измеряется по потерям энергии альфа-частиц ^{4}He . Концентрация атомов бора в массивных или гетерогенных биологических объектах определяется по гамма-квантам, испускаемым возбужденным ядром ^7_3Li .

Работы проводятся на 16-метровой пролетной базе одного из каналов импульсного периодического реактора ИБР-30 ЛНФ ОИЯИ. Определение концентрации атомов бора и их распределение по глубине в тонких слоях исследуемых материалов осуществляется в пучке тепловых нейтронов. Фон от быстрых нейтронов и гамма-квантов реактора устраняется по методу времени пролета.

Содержание ядер бора *in vivo* в крупных (более 2000 см³) биологических объектах определяется тоже в поле тепловых нейтронов, но рождаемых непосредственно в исследуемом объекте при замедлении быстрых нейтронов. Кванты от реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ ре-

гистрируются после инъекции короткого (2-4 мкс) импульса быстрых нейтронов в течение диффузии тепловых нейтронов в объекте. Этим самым практически устраняется фон от быстрых нейтронов и мгновенных квантов деления. Использование методов времени пролета и времени диффузии значительно увеличивает отношение эффект/фон по сравнению со стационарными γ -факторами.

1. Определение распределения атомов ^{10}B в приповерхностных слоях материалов.

- В данной работе показаны возможности использования реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ на примере полученных результатов при изучении:
- распределения по глубине всех, а не только электрически активных ядер бора, после имплантации в кремний ионов $^{10}\text{B}^+$ и $^{10}\text{BF}_2^+$;
 - влияния последующих технологических процессов (отжиг, нанесение окисных пленок) на первичное распределение;
 - приповерхностного распределения бора в стекловидных металлах типа $\text{Fe}_{80}\text{B}_{20}$, $\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{P}_{14}\text{B}_6$, $\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{B}_{20}$;
 - диффузии в алюминий бора в процессе его напыления и последующего отжига;
 - распределение бора в листьях кукурузы в зависимости от концентрации борной кислоты в питательной среде.

1.1. Методика измерений

Схема экспериментальной установки и измерительного тракта показана на рис. 1. Образец устанавливается в пучке нейтронов диаметром 4,0 см параллельно плоскости кремниевого поверхностно-барьерного детектора * на расстоянии 5 см от оси пучка. Для постоянного контроля измерительного тракта по энергии и для мониторинга пучка используется мишень из ^6LiF толщиной $0,06 \text{ мг} \cdot \text{см}^{-2}$. Таким образом, калибровка спектрометрического тракта по энергии осуществляется при каждом измерении по энергетическим линиям частиц и ядер, возникающих в реакциях $^{6}\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ и $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$, рис. 2.

* Разрешение используемых детекторов для альфа-частиц ^{241}Am - 18-20 кэВ.

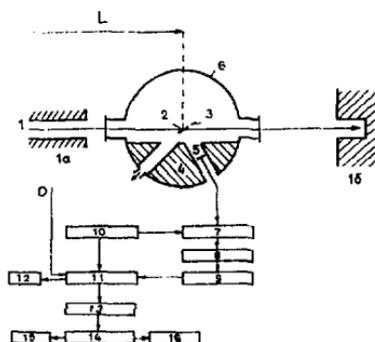


Рис. 1. Схема экспериментальной установки. 1 - нейтронный пучок, 1а - коллиматор диаметром 4,0 см, 1б - ловушка пучка, 2 - образец, 3 - монитор, 4 - свинцовая защита, 5 - детектор, 7-15 - спектрометрический тракт.

Получаемый в измерениях аппаратурный спектр альфа-частиц $I(\varepsilon)$, рис. 3, представляет собой свертку двух функций:

$$I(\varepsilon) = \int_{\varepsilon} F(\varepsilon, E) \Phi(E) dE,$$

где $\Phi(E)$ - реальный спектр альфа-частиц, вылетающих из образца;

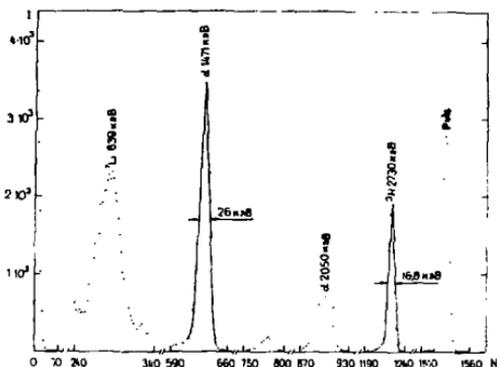


Рис. 2. Амплитудный спектр частиц от реакций $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ и $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$. N - номер канала, I - число импульсов на канал.

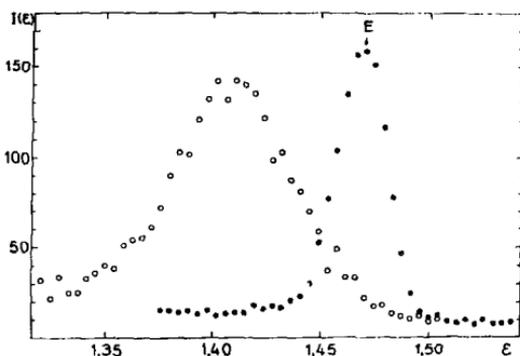


Рис. 3. Аппаратурные спектры альфа-частиц от образцов кремния с имплантированными ионами $^{10}\text{B}^+$ и $^{10}\text{BF}_2^+$. ○ - ионы $^{10}\text{B}^+$ с энергией 80 кэВ, ● - ионы $^{10}\text{BF}_2^+$ с энергией 20 кэВ, E = 1,471 - энергия альфа-частиц от реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ на тепловых нейтронах.

$F(E, E)$ – ядро интегрального уравнения (I), представляющего собой аппаратный спектр альфа-частиц в зависимости от энергии (E) рожденной в образце частицы.

При решении интегрального уравнения (I) (нахождение искомой функции $\Phi(E)$) ядро уравнения представлялось в виде численных значений, получаемых экспериментально от образца кремния с имплантированными ионами $^{10}\text{B}F_2^+$ при энергии 20 кэВ, рис. 3.

По распределению числа альфа-частиц в зависимости от потерь их энергии $\Phi(\Delta E)$, найденного из функции $\Phi(E)$, вычисляется глубинное распределение атомов бора в исследуемых материалах.

Средний пробег частиц $\bar{R}(E)$, потерявших в образце энергию ΔE , определяется численным интегрированием уравнения

$$\bar{R}(E) = \int_E^{E+\Delta E} [L(E)]^{-1} dE,$$

где $L(E)$ – тормозная способность альфа-частиц (кэВ/мкм). Значения $L(E)$ для элементов брались из таблиц, составленных Meitner /9/. В том случае, когда исследуемые образцы были многоэлементными, тормозная способность рассчитывалась согласно правилу Брегга. Количественное определение ^{10}B осуществлялось путем сравнения с эталонами, количество бора в которых было известно с точностью $\pm 2\%$ /5/. При потоке тепловых нейтронов 10^6 нт/см².с минимально определяемое количество ^{10}B составляет 10^{-10} г.

2. Результаты и обсуждения

Рис. 4 представлены полученные данные о глубинном распределении атомов бора в различных образцах кремния при имплантации в них ионов $^{10}\text{B}^+$ и $^{10}\text{B}F_2^+$ с энергиями 10, 25, 60 и 80 кэВ. В полученных распределениях положение максимумов (средние пробеги ионов $\bar{R}/10$) хорошо согласуются с теоретическими данными Meitner /9/. Полуширина же распределений по сравнению с теорией на 20–30% шире.

Влияние последующего отжига при температурах 400 и 900°C на распределение атомов бора показано на рис. 5. Как видно из рис. 6, наличие на поверхности кремния окисной пленки толщиной 1200 Å приводит к заметному накоплению ядер бора на границе раздела сред. В стекловидных металлах метод позволяет наблюдать

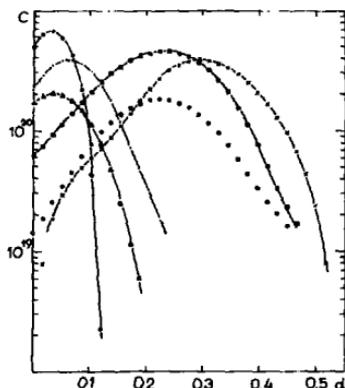
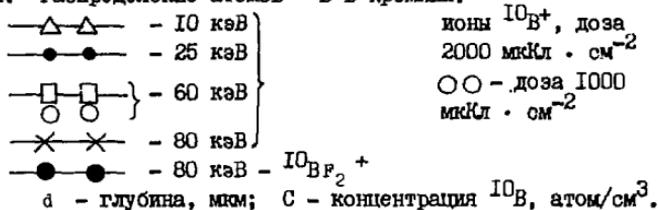


Рис. 4. Распределение атомов ^{10}B в кремнии.



концентрацию ^{10}B до 1,2 мкм. Знание приповерхностного состава стекловидных металлов необходимо для отработки технологии получения тонких пленок для задач микроэлектроники. Из полученных результатов видно (рис. 7), что приповерхностные концентрации атомов бора одного и того же образца различны и меньше расчетных для этих сплавов. Непосредственно у поверхности, от 0 до 0,2 мкм, наблюдается довольно значительное уменьшение концентрации бора по сравнению с концентрацией в глубине образцов.

На рис. 8 представлено распределение атомов бора в алюминиевой фольге, полученное при вакуумном напылении бора при температуре образца 150–200°C. Обращает на себя внимание диффузия атомов бора на большие глубины в процессе напыления, кривая I, и отсутствие ее при последующем отжиге образца при температуре 400°C в течение 2 часов. Вероятно, это связано с тем, что в процессе напыления (10–15 с) диффундирует атомарный бор, а

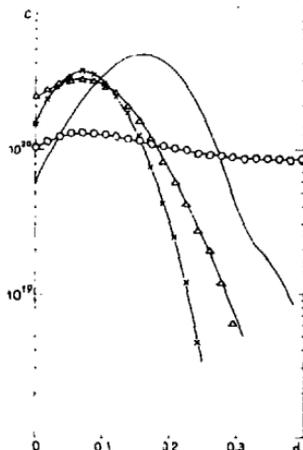


Рис. 5. Влияние отжига на распределение атомов ^{10}B в кремнии. Доза имплантации - $2000 \text{ мкКл} \cdot \text{см}^{-2}$ при энергии E_1 . —x—x— до отжига, $E_1 = 25 \text{ кэВ}$, —Δ—Δ— после отжига при температуре 400°C в течение 30 мин, $E = 25 \text{ кэВ}$, — — — до отжига, $E = 40 \text{ кэВ}$, —o—o— после отжига при температуре 900°C в течение 30 мин. d - глубина, мкм; C - концентрация ^{10}B , атом/ см^3 .

после напыления - не свободный бор, а бориды алюминия.

В качестве примера применения метода в биологии в табл. I и II приведены полученные данные о концентрации бора в листьях кукурузы при различных концентрациях борной кислоты в питательной среде и распределение бора по длине листа.

Таблица I.

Концентрация H_3BO_3 , мол/л	10^{-2}	10^{-3}	10^{-4}	Контроль	Примечание
Концентрация ^{10}B	8,6	0,79	0,65	0,35	время роста
Атом/ $\text{см}^3 \cdot 10^{-20}$	1,9	0,57	0,28	-	72 час. 24 час.

Таблица П.

Участок стебля листа, расст. в мм от черенка	0-15	15-27	27-42
Концентрация ^{10}B атом/см ³ · 10 ⁻²⁰	14,0	9,60	8,2

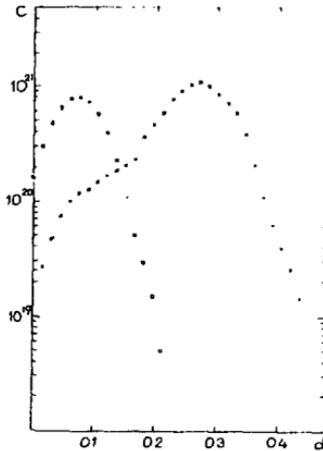


Рис. 6. Распределение атомов бора в кремнии. Доза имплантации - $2000 \text{ мкКл} \cdot \text{см}^{-2}$ при энергии E_1 .

○ ○ ○ - ионы $^{10}\text{B}^+$, $E_1 = 20 \text{ кэВ}$ без окисной пленки.

× × × - ионы $^{10}\text{B}^+$, $E_1 = 80 \text{ кэВ}$, толщина окисной пленки $0,12 \text{ мкм}$.

2. Определение концентрации бора по гамма-квантам

В последние годы большое внимание исследователей привлекает использование в нейтронзахватной терапии боросодержащих соединений типа $^{12}\text{H}_{11}\text{Si}^{m-}$ и $^{14}\text{H}_{12}\text{Si}^{m-}$ /11/. Знание распределения этих соединений в облучаемом объекте необходимо для опре-

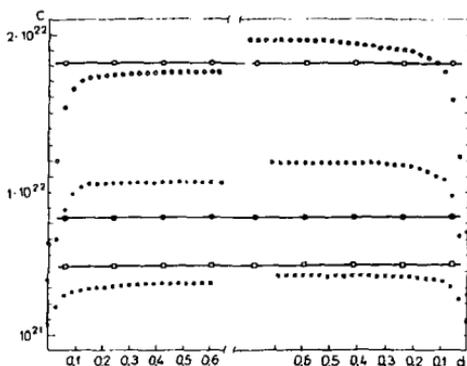


Рис. 7. Приповерхностное распределение ядер ^{10}B в стекловидных металлах. $\circ\circ\circ$ - $\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{B}_{20}$, \dots - $\text{Fe}_{80}\text{P}_{10}\text{B}_{10}$, $\square\square\square$ - $\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{P}_{14}\text{B}_6$, — — — теоретическая концентрация, d - глубина, мм; C - концентрация ^{10}B , $\text{атом}\cdot\text{см}^{-3}$.

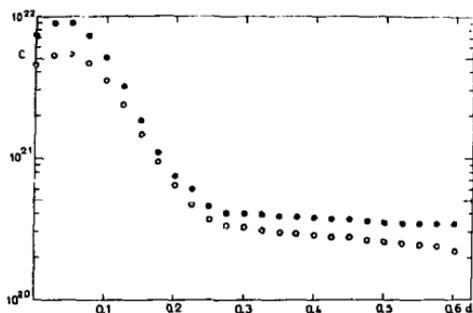


Рис. 8. Распределение атомов бора в алюминии. $\bullet\bullet\bullet\bullet$ - после вакуумного распыления бора, температура подложки около 200°C ; $\circ\circ\circ\circ$ - этот же образец, но после отжига при температуре 400°C в течение 120 мин., d - глубина, мм; C - концентрация ^{10}B , $\text{атом}\cdot\text{см}^{-3}$.

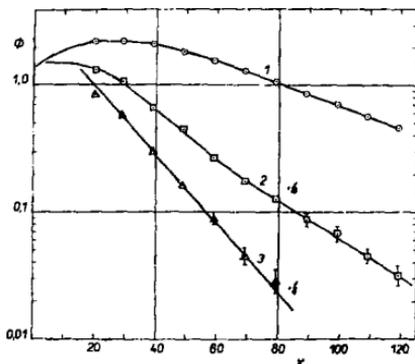


Рис. 9. Распределение плотности потока тепловых нейтронов $\Phi(x)$ по оси пучка при облучении фантома: 1 - быстрыми нейтронами с средней энергией 3,0 МэВ; 2 - надтепловыми нейтронами с средней энергией 100 эВ; 3 - тепловыми нейтронами; X - глубина фантома, мм.

деления дозного поля. Для выбора наиболее оптимальных условий облучения мишени требуется непрерывное наблюдение *in vivo* за процессами накопления (задержки) боросодержащих соединений в опухолевых и нормальных тканях. Кроме того, необходимо *in vitro* изучать процессы выведения соединений из крови. Для этих целей и была разработана методика определения концентрации ^{10}B по гамма-лучам.

2.1. Методика измерений

Для определения концентрации атомов бора в крупных объектах *in vivo* использовался мононаправленный пучок быстрых нейтронов. Использование быстрых нейтронов обосновывается тем, что в водородосодержащих средах определяющую роль в формировании поля тепловых нейтронов несут первичные нейтроны пучка и потому затухание результирующего поля тепловых нейтронов в направлении пучка $\Phi(x)$, рис. 9, значительно меньше, чем для тепловых и надтепловых нейтронов.

Результирующее временное поле тепловых нейтронов в любой точке \vec{r} среды, после инъекции в нее короткого импульса быстрых нейтронов, как известно, затухает по закону:

$$\Phi(\vec{r}, t) = \sum_{\alpha} S_{\alpha} R_{\alpha}(\vec{r}) \exp(-\alpha t). \quad (3)$$

Операции суммирования гармоник с постоянными затуханиями α можно провести экспериментально, если регистрировать нейтроны по захватным гамма-лучам со всего объема облучаемого объекта. Тогда усредненный по объему поток нейтронов затухает с постоянной затухания основной гармоникой $\alpha_0 = \tau^{-1}$ *) .

Следовательно, при проведении измерений во временном окне (от 20 до 400 мкс), рис. 10, практически регистрируются только гамма-кванты от захвата тепловых нейтронов элементами исследуемого объекта.

Из примера амплитудного спектра, рис. 11, видно, что фон в районе линии 478 кэВ ***) определяется в основном комптоновскими квантами от водородной линии 2223 кэВ. Концентрация ядер бора

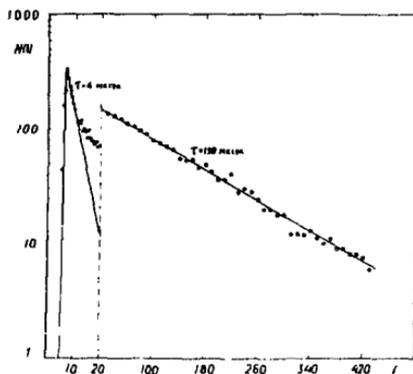


Рис. 10. Временное распределение $N(t)$ гамма-квантов при инъекции в фантом быстрых нейтронов с длительностью импульса $\tau = 4,0$ мкс. $\tau = 130$ мкс — среднее время жизни нейтронов в тканеэквивалентном фантоме 4000 см^3 , t — время в мкс.

*) Измеряя постоянные затухания для отравленной I/O поглотителем (α_{0B}) и неотравленной (α_{00}) среды, можно определить среднюю концентрацию вводимых ядер N_B по выражению $N_B = \frac{\alpha_{00} - \alpha_{0B}}{\sigma \sigma_a}$, где σ_a — сечение поглощения вводимых ядер. Таким способом можно определять концентрацию ${}^6\text{Li}$.

**) Уширение линии 478 кэВ объясняется доплеровским сдвигом $(\pm v/c)$ гамма-квантов, испускаемых возбужденным ядром ${}^7\text{Li}$.

in vitro в толстых, относительно пробега альфа-частиц, образцах определялась тоже по гамма-лучам, но в пучке тепловых нейтронов. В обоих случаях для регистрации гамма-квантов используются Ge/Li/ -детекторы объемом 20-30 см³. Схема расположения детекторов и образцов относительно пучка нейтронов показана на рис.12.

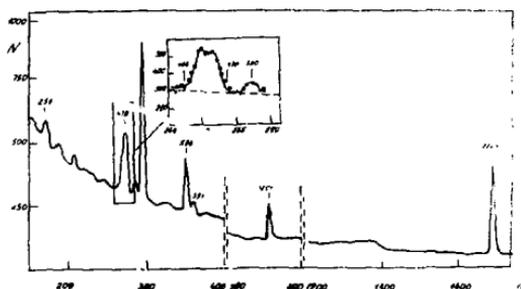


Рис. 11. Амплитудный спектр Ge/Li/ -детектора при концентрации ¹⁰B в фантоме 10 мкг/см³. 2223 - линия водорода в кэВ, 1201 - линия двойной утчки в кэВ, 478 - линия ¹⁰B, в кэВ.

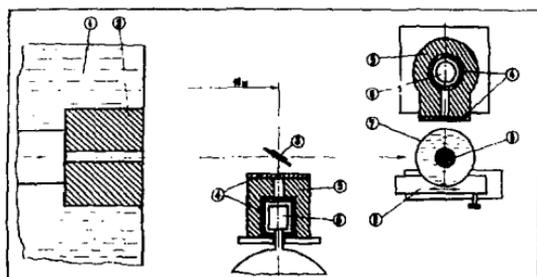


Рис. 12. Схема эксперимента. 1 - водная защита, 2 - свинцовый коллиматор, 3 - образец, 4 - защита из ⁶LiF, 5 - свинцовая защита, 6 - Ge/Li/ детектор, 7 - фантом, 8 - модель опухоли, 9 - механизм перемещения фантома по оси пучка.

2.2. Результаты и обсуждения

Для определения чувствительности и диапазона измеряемых концентраций атомов ^{10}B были экспериментально получены следующие характеристики метода.

1. Зависимость числа импульсов в фотопике линии 478 кэВ от концентрации ^{10}B в тканезквивалентном фантоме объемом 4000 см^3 , рис.13. Эта зависимость была получена при диаметре коллиматора

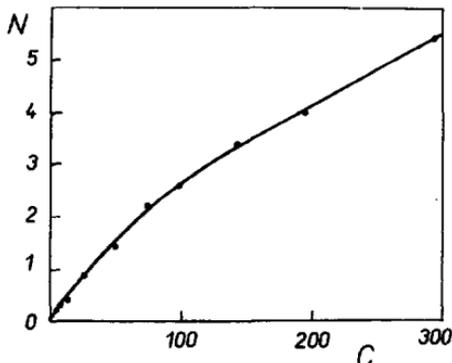


Рис. 13. Зависимость числа импульсов от концентрации ^{10}B .
 $N \cdot 10^{-3}$ — число импульсов, C — концентрация ^{10}B в фантоме, $\text{мкг}/\text{см}^3$.

на Ge/Li - детекторе 30 мм и расстоянии от оси пучка до оси детектора 350 мм. При указанных условиях надежно определяется концентрация $3,0 \pm 0,35$ мкг при локальной дозе быстрых нейтронов 1,0 рад. Нелинейность зависимости $N(C)$ при концентрациях выше $50\text{ мкг}/\text{см}^3$ объясняется уменьшением плотности потока тепловых нейтронов, рис.14а, за счет увеличения макроскопического сечения захвата Σ_a .

2. Определен диапазон измеряемых концентраций ^{10}B в модели опухоли объемом 10 см^3 при концентрации бора в окружающей среде $20\text{ мкг}/\text{см}^3$. Из аналогичных, представленных на рис.13, зависимостей $N(C)$ (рис.14в) видно, что *in vivo* можно определять концентрацию ^{10}B в диапазоне $30\text{--}100\text{ мкг}/\text{см}^3$.

3. Найдена нижняя граница определяемых концентраций ^{10}B *in vitro* в пучке тепловых нейтронов с потоком ^{10}B нейтр/ $\text{см}^2 \cdot \text{с}$

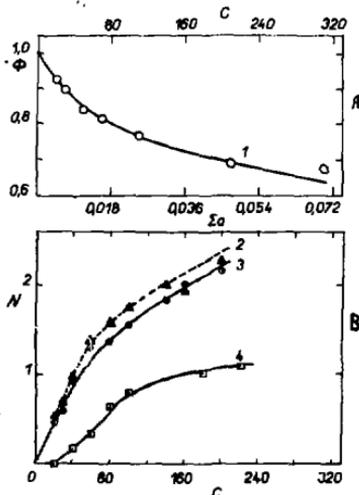


Рис. 14. А. Зависимость плотности потока тепловых нейтронов от концентрации ^{10}B в фантоме. Φ - плотность потока в относительных единицах; C - концентрация ^{10}B , $\text{мкг}/\text{см}^3$; Σ_a - макроскопическое сечение, см^{-1} .

В. Зависимость числа импульсов от концентрации ^{10}B при просматривании детектором: 2 - гомогенного фантома при концентрации бора $20 \text{ мкг}/\text{см}^3$ с моделью опухоли, в которой изменялась концентрация бора от 20 до $220 \text{ мкг}/\text{см}^3$; 3 - гомогенного фантома без опухоли; 4 - эффект только от модели опухоли.

$N \cdot 10^{-3}$ - число импульсов.

для следующих видов образцов:

- обезвоженных тканей экспериментальных животных - $10 \pm 0,5 \text{ мкг}$;
- водных растворов (кровь, плазма крови) при объеме в пучке не менее $10 \text{ см}^3 - 2,5 \pm 0,1 \text{ мкг}/\text{см}^3$.

Благодаря таким значениям чувствительности определения ^{10}B *in vivo* и *in vitro* метод можно использовать не только в практике нейтронзахватной терапии, но и при изучении распределения нуклидов, содержащих ^{10}B , в экспериментальных животных.

В ы в о д н

Измерения, проведенные на импульсном реакторе ИБР-30 по методу времени пролета, показали, что в перспективе на ИБР-2 ¹⁷ при потоке тепловых нейтронов в пучках до $5 \cdot 10^8$ нейтр/см²·с время измерения одного образца с концентрацией 10^{15} атом/см² сократится до 5-10 мин. В настоящее время на одно измерение профиля затрачивается 20-30 часов. Кроме того, увеличение интенсивности пучка позволит изучать профили бора в материалах в широком диапазоне доз ионов. В пучках ИБР-2 можно будет измерять распределение таких атомов, как Li, N и He по реакциям ${}^6\text{Li}/n, \alpha / T$, ${}^{14}\text{N}/n, p / {}^{14}\text{C}$ и ${}^3\text{He}(n, p)T$ соответственно. Например, на ИБР-30 при размещении детектора и образца в пучке (плохая геометрия) за 1 час измерений хорошо видна линия протонов в реакции ${}^{14}\text{N}/n, p / {}^{14}\text{C}$ от азота воздуха (0,5 мм), рис.15.

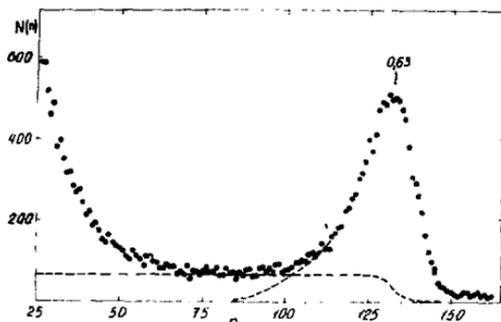


Рис. 15. Аппаратурный спектр протонов от реакции ${}^{14}\text{N}(n,p){}^{14}\text{C}$.
 n - номер канала, N/n - число импульсов на канал.

Сплошное распределение протонов обусловлено азотом лавсана (толщина 0,3 мм).

Литература

1. Garbrah B.W., Whitley J.E. Anal. Chem., 1967, 39 (3), 345
2. Comar D. e.a. Nucl. Appl., 1969, 6, 344.
3. Bontemps A., Ligeon E. Rapport CEA-N-1492, Grenoble, 1971.
4. Kvitek J., Hnatowicz V., Kotas P. Radiochem. Radioan. Lett., 1976, 24/3/, 205.
5. Богач Я. и др. ОИЯИ, РЗ-10777, Дубна, 1977.
6. Murray B.W. e.a., Biomedical Dosimetry, Proceedings of a Symposium, Vienna, Inst. Atomic Energy Agency, Vienna, 1975, IAEA-SM-193/48, p.179.
7. Ананьев В.Д. и др., ОИЯИ, 13-4395, Дубна, 1969.
8. Богач Я. и др., ОИЯИ, П11-11212, Дубна, 1978.
9. Ziegler J.F., Cole G.W., Baglin J.E.E., J. Appl. Phys., 1972, 43, 3808.
10. Brice D.K. Ion-Implantation Range and Energy Deposition Distributions, Vol.1. (IFI) Plenum, New York, 1975, p. 569.
11. Hatanaka H., Sweet W.H. Biomedical Dosimetry. Proceed. of a Symposium, Vienna, IAEA, 1975, IAEA-SM-193/79, p.147.

ПРИМЕНЕНИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ УСКОРИТЕЛЯ
ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ ДЛЯ АНАЛИЗА ПОВЕРХНОСТНЫХ СЛОЕВ И ТОНКИХ ПЛЕНОК

И.М.Барит, Б.С.Аудинов, Л.Е.Кузьмин

Институт ядерных исследований АН СССР, Москва

В последние годы в связи с разработкой технологии производства специальных материалов для новых областей техники (микроэлектроники, сверхпроводящей и лазерной техники, ядерной энергетики и др.) значительно возросла роль методов анализа, контролирующего распределение элементного состава по глубине поверхностных слоев и тонких пленок с толщиной, не превышающей нескольких микрометров.

Существующие физико-химические методы анализа не всегда обеспечивают получение нужной информации или приемлемой точности, особенно при измерении распределений по глубине газообразующих примесей (H, He, C, N, O).

В настоящей работе рассматриваются разработанные нами количественные методы определения состава и толщины тонких пленок, поверхностных загрязнений, а также распределения основных, примесных и легирующих элементов (^2H , B, C, N, O, F, Al, P, и др.) по глубине поверхностных слоев металлов и сплавов, полупроводниковых материалов и окисных пленок. Методы основаны на облучении образцов заряженными частицами (протонами, дейтронами) при энергии $E = 0,5 + 1,5$ МэВ с одновременной регистрацией мгновенного излучения ядерных реакций типа (p, γ) , (p, α) , (d, p) и (d, α) , упруго рассеянных частиц или характеристического рентгеновского излучения^{1/}.

Ядерные реакции типа (p, γ) характеризуются наличием узких изолированных резонансов в функции возбуждения реакции. Для изолированного резонанса сечение реакции $\sigma(E, E_p)$ описывается формулой Брейта-Вигнера. Информацию о профиле концентрации элементов по глубине $c(x)$ можно получить из измерения выхода (p, γ) - реакции при плавном изменении средней энергии протонов E_0 от

резонансного значения E_p и выше, используя однозначную зависимость средних потерь энергии $\epsilon_o = E_o - E_p$ от глубины слоя x , в котором происходит взаимодействие протонов с ядрами определяемого элемента. Для узких резонансов параметры функции $\delta'(E, E_p)$, как правило, точно не известны. Однако в этом случае $\delta'(E, E_p)$ может быть выражена через произведение δ' -функции Дирака на силу резонанса. Тогда, если среднеквадратичный энергетический разброс протонов в мишени-образце (энергетический разброс пучка и стретглинг) много больше ширины резонанса (Γ), выход реакций будет равен:

$$Y(\epsilon_o) = \frac{\pi \delta_p \Gamma}{2 S(E_p)} \int_0^{\epsilon_{max}} \rho(\epsilon_o, x(\epsilon)) c(x(\epsilon)) d\epsilon, \text{ квант/протон, (I)}$$

где: $\frac{\pi}{2} \delta_p \Gamma$ - сила резонанса, $\text{см}^2 \cdot \text{эВ}$; $S(E_p)$ - тормозная способность среды при $E=E_p$, МэВ/см ; ϵ_{max} - максимальная потеря энергии, соответствующая максимальной энергии ускорителя, МэВ ;

$\rho(\epsilon_o, x(\epsilon))$ - плотность распределения протонов внутри мишени. В качестве образца сравнения выбирается "толстая" мишень с равномерным распределением определяемого элемента. Решение уравнения (I) осуществляется методом итераций с использованием χ^2 - критерия.

Мы применили данный метод расшифровки кривых выхода (p, γ) - реакции, в частности, для определения профилей концентрации Al , имплантированного в SiC при энергии 40 кэВ и дозе $3 \cdot 10^{16} Al^+ / \text{см}^2$. Использовалась реакция $^{27}Al(p, \gamma)^{28}Si$; ($E_p = 992,0$ кэВ, $\Gamma < 80$ эВ). Гамма-кванты с энергией 10,76 МэВ регистрировались кристаллом $NaI(Tl)$ 80 x 80 мм. Предел обнаружения Al составил величину $\sim 10^{-10}$ г/см² в анализируемом слое, а разрешение по глубине $\sim 50 \text{ \AA}$. Резонансные ядерные реакции использовались нами также для изучения распределений ^{18}O и ^{31}P соответственно в окисных пленках $Ta-O$ и полупроводниковых материалах.

Ядерные реакции типа (d, p) , (d, α) , (p, α) характеризуются, как правило, сложной зависимостью $\delta'(E)$. Заряженные частицы - продукты реакции теряют свою энергию при прохождении через вещество и несут информацию о профиле концентрации $c(x)$. Используя известную функцию возбуждения $\delta'(E_o, \theta)$, где θ - угол вылета эмиттируемых частиц, кинематику реакции и $S'(E)$, можно определить $c(x)$ путем расшифровки энергетического спектра частиц-продуктов реакции. Мы рассмотрели возможность применения относитель-

ного метода анализа с использованием в качестве образца сравнения "толстой" мишени с равномерным распределением определяемого элемента $c_{ст}^{1/2}$. Это позволило исключить влияние неточности в измерении $B(E_0, \theta)$ на результаты анализа. Метод основан на подобном характере зависимости $S(E)$ для различных элементов и заключается в сравнении выходов реакции из анализируемого образца $Y(\epsilon')$ и образца сравнения $Y(\epsilon')_{ст}$ при одинаковых значениях потерь энергии эмиттируемых частиц ϵ' и геометрии измерения. Для определения глубины и концентрации использовались следующие соотношения:

$$\epsilon' = Ux \quad (2)$$

$$c(x) = c(x(\epsilon')) = \frac{Y(\epsilon')U}{Y(\epsilon')_{ст}U_{ст}} c_{ст} \quad (3)$$

где U и $U_{ст}$ - усредненные (с учетом кинематики реакции) тормозные способности среды для исследуемого образца и образца сравнения соответственно.

Соотношения (2) и (3) не являются строгими. Однако при выборе образца сравнения с близкими значениями U и $U_{ст}$ и потерях энергии бомбардирующих и эмиттируемых частиц, удовлетворяющих условиям: $\epsilon \approx 0,2 E_0$ и $\epsilon' \approx 0,2 E'_0$ соответственно, где E'_0 - энергия частиц, эмиттируемых из бесконечного тонкого поверхностного слоя, погрешностями в вычислении $c(x)$ из (2) и (3) можно пренебречь. Например, расчеты, выполненные для реакции $^{16}O(d,p)^{17}O^x$, показали, что соотношения (2) и (3) справедливы даже в случае $\epsilon \approx 0,3E_0$ при $E_0 = 0,75$ МэВ и $\theta = 165^\circ$. Это дало возможность измерять профили концентрации до глубин $\sim 2+3$ мкм с погрешностью $\sim 10\%$. Предел обнаружения кислорода составил величину $\sim 5 \cdot 10^{-3}\%$ (по массе) в анализируемом слое, а разрешение по глубине $\sim 700 \text{ \AA}$. Данный метод мы применили также для изучения распределений 2H , ^{11}B , ^{12}C , и ^{14}N в поверхностных слоях фольг различных металлов и сплавов.

Помимо ядерных реакций для исследования тонких пленок ($Si-O$, $Au-Si$, $Nb-Re$, $Nb-Sn$ и пр.) мы использовали также кулоновское рассеяние заряженных частиц. Дифференциальное сечение рассеяния описывается формулой Резерфорда. Поскольку потери энергии заряженных частиц при рассеянии на легких ядрах больше, чем в случае тяжелых ядер, то в спектре упруго рассеянных

частиц "пики", соответствующие локализованным в поверхностных слоях элементам с большими значениями массовых чисел, чем у матрицы, будут отделяться от сплошного спектра матрицы. Для определения $c(x)$ используются соотношения (2) и (3). Учитывая, что

$\epsilon(E) \sim Z^2$, где Z - атомный номер элемента, в качестве образца сравнения может быть выбрана сама матрица. Погрешность определения состава в этом случае не превосходит 2% отн.

Разрешение по глубине определяется разрешением детектора и составляет величину $\sim 500 \text{ \AA}$, а предел обнаружения $\sim 10^{-8} \text{ г/см}^2$.

При анализе по характеристическому рентгеновскому излучению (ХРИ, регистрируемому $S_i(L_i)$ полупроводниковым детектором, мы использовали ускоритель в качестве мощного источника монохроматического К-излучения, возбуждаемого протонами с $E=1,5 \text{ МэВ}$ в сменных мишенях (с выходом $10^8 + 10^{10}$ квант/с.мкА). Это позволило исключить влияние матрицы при определении элементов с $Z < Z$ матрицы - 2 путем соответствующего выбора энергии К-излучения, возбуждающего ХРИ. Выход ХРИ из толстых мишеней составил в величину $\sim 10^{-4} + 10^{-6}$ квант/протон, а рассчитанный предел обнаружения, соответствующий предельной скорости счета спектрометра ($\sim 10^3$ имп./с), - $10^{-5}\%$ (по массе).

Рассмотренные ядерно-физические методы анализа существенно повысили уровень аналитического контроля технологических процессов на стадии их отработки.

Литература

1. Б.С.Кудинов, Л.Е.Кузьмин. В сб. Современные методы анализа микрообъектов и тонких пленок. М. "Наука", 1977, с.280.
2. И.Я.Барит, Б.С.Кудинов, Л.Е.Кузьмин. Тезисы докладов XXVII ежегодного совещания по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра. Л. "Наука", 1977, с.571.

**Ядерные фильтры
и радиационное материаловедение**

ЯДЕРНЫЕ ФИЛЬТРЫ

Ю.С. Замятин

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна.

Темой доклада является одно из наиболее интересных, практически важных применений ускоренных тяжелых ионов для прикладных целей — получение микропористых, или, как их обычно называют, "ядерных" фильтров. Ценность разработки и создания ядерных фильтров заключается в том, что с помощью ускоренных тяжелых ионов удастся получить микрофильтры, существенно превосходящие по ряду своих свойств все другие типы микрофильтров. В связи с этим к ядерным фильтрам сразу же стал проявляться огромный интерес со стороны смежных областей науки и техники и различных отраслей народного хозяйства.

Идея получения ядерных фильтров возникла как развитие метода регистрации тяжелых заряженных частиц с помощью полимерных пленок и в качестве основы своей технологии использовала технику регистрации заряженных частиц. Как известно, тяжелые заряженные частицы, проходя через различные материалы, создают вдоль своего пути области радиационного повреждения вещества, которое, как правило, является химически более активным по сравнению с исходным веществом. Используя это различие, можно осуществить избирательное травление разрушенных областей и, в случае сквозного прохождения ускоренных ионов через пленку, получать в ней сквозные каналы правильной цилиндрической формы [1].

Отличительной чертой ядерных фильтров является высокая степень однородности размеров пор (~5%), что достигается благодаря монохроматичности используемых ускоренных тяжелых ионов как по массе, так и по энергии.

Необходимая для получения фильтров энергия ионов определяется величиной их пробега в облучаемом полимерном материале заданной толщины и возрастает с увеличением массы ускоряемых ионов (Рис. I) [2].

Практически облучение пленки ионами в ЛЯР ОИЯИ произво-

дится на сгибом из отводов (ионопроводов) ускорителя У-300. По пути к пленке пучок ионов проходит через пару отклоняющих пластинок, на которые подается переменное электрическое поле, и развертывается в горизонтальной плоскости на ширину пленки - 300 мк (Рис.2). Изменением скорости перемещения облучаемой пленки можно, при постоянной интенсивности пучка ускоренных ионов, варьировать число пор на 1см^2 фильтра. Так, например, при токе ионов 1 мкА ($\sim 10^{12}$ ионов/с) и скоростях перемотки пленки от 0,1 м/с до 1 м/с число пор составляет $10^8 - 10^9$ на 1см^2 . Из этой оценки следует, что процесс облучения пленки тяжелыми ионами обладает высокой производительностью и позволяет облучать за час более 1000см^2 пленки.

Вторая часть технологического процесса - химическая обработка (травление) облученной пленки является весьма простой, но более продолжительной операцией. В хорошем приближении процесс травления можно разбить на две стадии.

Первая стадия - это растворение деструктурированного вещества, образовавшегося вдоль следа иона в результате радиационных повреждений полимера. На этой стадии процесса в пленке образуются сквозные каналы диаметром 50-100 Å. Если скорость травления вдоль трека - v_{TP} , то время сквозного протравливания пленки составляет $t_1 = \ell / 2v_{TP}$, где ℓ - толщина пленки. Так видно из рис.3, время сквозного протравливания пленки из лавсана толщиной 10 мкм, облученной ионами ксенона, в растворе 6N NaOH при температуре 60°C составляет доли минуты и сильно зависит от температуры раствора и сорта тяжелого иона, точнее его массы и энергии, так как при определяется удельная потеря энергии ионов dE/dx и степень радиационных повреждений полимера. В частности, при значениях dE/dx , меньших определенного порога (порога чувствительности), избирательного травления не происходит. С этой точки зрения предпочтительнее проводить облучение пленок более тяжелыми ионами и выбирать их энергию вблизи максимума зависимости dE/dx от энергии иона (Рис.4) [2].

На второй стадии процесса происходит увеличение диаметра сквозного канала за счет травления исходного полимера со скоростью v_n (Рис.3). Продолжительность этого процесса $t_2 = d/2v_n$ определяется диаметром d , до которого необходимо довести размер пор. Скорость этого процесса много меньше ($v_n \ll v_{TP}$), поэтому, если d не слишком мало по сравнению с ℓ , увеличе-

нием диаметра пор за время сквозного протравливания t_1 можно пренебречь, а общее время травления облученной пленки, равное сумме $t_1 + t_2$, определяется, главным образом, вторым слагаемым.

Как видно из рис. 3, скорость U_n сильно зависит от температуры, а общее время травления при тех же условиях (6M NaOH, $t^\circ = 60^\circ\text{C}$) составляет от нескольких минут до десятков минут (в зависимости от требуемого диаметра пор - см. рис.5). Такая сильная температурная зависимость может быть легко использована для регулирования условий протекания процесса и его интенсификации. С другой стороны, для получения фильтров со стабильными параметрами требуется высокая стабилизация температуры раствора.

Таким образом, образование пор ядерных фильтров основано на различной скорости протекания процессов травления для исходного полимера и участков полимера, подвергшихся радиационной деградации. Избирательность травления определяется отношением этих скоростей V_{tr}/V_n , сильно зависит от величины dE/dx и более слабо от температуры и концентрации травящего раствора.

Из приведенных выше зависимостей и возможностей ускорения ионов на циклотроне У-300 вытекает, что одними из наиболее подходящих для облучения пленок частиц являются ионы ксенона (Xe^{+9}) с энергией ~ 150 МэВ, имеющие значение $dE/dx = 80 \frac{\text{МэВ}}{\text{мг/см}^2}$. Для получения фильтров могут быть использованы и ионы аргона (Ar^{+6}), которые хотя и имеют максимальную величину $dE/dx = 30 \frac{\text{МэВ}}{\text{мг/см}^2}$, обладают значительно большим пробегом. Это позволяет облучать полимерные пленки большей толщины и допускает вывод пучка ионов через фольгу на воздух. Была показана возможность использования и еще более легких ионов, таких как неон, кислород, углерод [3,4].

В качестве полимерных материалов, пригодных для получения ядерных фильтров, может быть использовано большое количество различных полимеров (поликарбонат, лавсан, полиарилат, полиимид, фторопласт и др.), обладающих разнообразными свойствами. Нами в качестве основного материала для изготовления фильтров был выбран лавсан. Такой выбор связан с достаточно хорошими свойствами лавсана - механической прочностью, термостойкостью, устойчи-

востью к агрессивным средам и налаженным промышленным производством этого материала. В качестве химического реагента для травления облученного лавсана используется щелочь NaOH . Схема технологического процесса химической обработки облученной пленки показана на рис.6.

С помощью этой технологии налажено получение ядерных фильтров, обладающих следующими характеристиками:

- 1) толщина лавсановой пленки 6-12 мкм,
- 2) ширина пленки до 300 мм,
- 3) диаметр каналов (пор) 0,03 - 3 мкм,
- 4) разброс размеров пор $\sim 5\%$,
- 5) пористость фильтров до 20%,
- 6) рабочий диапазон температур до 140°C, допускается стерилизация фильтров при 120°C,
- 7) негигроскопичность (набухание в воде не более 0,5%),
- 8) пассивность в биологическом отношении (разрешены к использованию в пищевой промышленности).

За счет малой толщины пленки ядерные фильтры имеют высокую пропускную способность для газов и жидкостей. Так, производительность фильтров по дистиллированной воде составляет $1 \text{ м}^3/\text{м}^2 \cdot \text{час}$ при диаметре пор $\sim 0,1 \text{ мкм}$ и $100 \text{ м}^3/\text{м}^2 \cdot \text{час}$ при диаметре пор $\sim 1 \text{ мкм}$. Пропускная способность для воздуха в 200-300 раз выше.

Такая пропускная способность не хуже, чем у широко известных зарубежных микрофильтров фирмы "Миллипор". Однако однородность размеров пор ядерных фильтров много выше, чем у этих фильтров (Рис. 7,8). Ядерные фильтры превосходят другие типы микрофильтров и по таким важным характеристикам, как механическая прочность, ненабухаемость, возможность стерилизации и регенерации. Кроме перечисленных технических качеств они обладают рядом преимуществ экономического характера.

Все эти обстоятельства обуславливают возможность широкого применения ядерных фильтров для решения многих научно-технических задач. К ним относятся, в первую очередь, процессы тонкой очистки, сепарации и концентрирования различных продуктов и технологических сред, как жидких, так и газообразных. Приведем несколько примеров:

1. Очистка от пыли и инородных частиц воздуха и жидких технологических сред при производстве сложных интегральных микро-

схем и полупроводниковых приборов в электронной промышленности, существенно повышая выход годных изделий. Испытания ядерных фильтров проводились на Томлинском заводе полупроводниковых приборов и дали положительные результаты [5,6].

2. Очистка и концентрирование вирусных вакцин с целью повышения их эффективности, позволяющие избавиться от присутствия в вакцине чужеродных белков и клеток и повысить концентрацию нужных вирусов в несколько десятков раз. Разработанная в Ленинградском политехническом институте технология успешно применяется для приготовления гриппозной вакцины и находится на стадии испытания для вакцин бешенства, тешового энцефалита и других вирусных заболеваний [7].

3. Сепарация и концентрирование кормовых и пищевых продуктов, позволяющие использовать дополнительные резервы белковых питательных веществ. Проведенные эксперименты показали, что ядерные фильтры лучше других типов фильтров удовлетворяют требованиям производства ферментных препаратов, кормового лизина, выделении молочного белка и молочного сахара из сывороток, являющихся отходами на предприятиях пищевой промышленности.

4. Проведение стерилизующей фильтрации жидких пищевых продуктов и лекарственных препаратов, способной полностью освободить их от микрофлоры и значительно увеличить сроки хранения. Такой способ стерилизации выгодно отличается от тепловой стерилизации или применения химических веществ, так как не снижает качества продуктов.

5. Определение дисперсного и элементного состава частиц и проведение микробиологического анализа при изучении и контроле загрязнения окружающей среды. Образцы ядерных фильтров испытывались в лабораторных и экспедиционных условиях с целью изучения загрязнения водных и воздушных пространств ридом организации и по их заключениям удовлетворяют предъявляемым требованиям, выгодно отличаются от фильтров других типов.

6. Создание жидких ионообменных мембран для проведения экстракционных процессов извлечением ценных продуктов из бедных растворов и отходов производства. Ядерные фильтры, используемые в качестве пористых перегородок в экстракционных системах, позволяют снизить потери экстрактов и использовать их более широкий круг.

7 Создание новых, более совершенных типов слоисто-вакуумной изоляции с использованием способности ядерных фильтров пропускать газовые молекулы и обеспечивать вакуумирование объема между слоями теплоизоляции и в то же время полностью отражать излучение при размерах пор, меньших длины волны теплового излучения. Это свойство ядерных фильтров позволит снизить коэффициент теплопроводности многослойной вакуумной изоляции и улучшить ее характеристики, что имеет большое значение в криогенной технике ^{18/}.

Это далеко не полный перечень самых разнообразных задач, которые могут быть успешно решены путем применения ядерных фильтров. Надо подчеркнуть, что число таких проблем и организаций, заинтересованных в получении ядерных фильтров, непрерывно растет.

Следует заметить, что расширение областей применения ядерных фильтров будет идти не только за счет выявления новых областей, в которых могут быть использованы фильтры, обладающие достигнутыми параметрами, но и за счет дальнейшего улучшения свойств ядерных фильтров.

Какие перспективы видны в этом направлении?

Наиболее доступным путем улучшения характеристик ядерных фильтров является изменение геометрических факторов - формы пор, их углового распределения и толщины пленки.

Такие изменения геометрической формы пор могут быть полезными в ряде случаев применения ядерных фильтров. Так, фильтры с коническими порами имеют большее среднее сечение по длине поры, по сравнению с цилиндрическими сечением и вследствие этого большую пропускную способность.

Еще большее увеличение пропускной способности фильтров может быть достигнуто дальнейшим уменьшением толщины используемых пленок. Переход от толщины 10 мкм к толщине 1 мкм дает увеличение пропускной способности в 10 раз. Однако практическое использование тонких фильтрующих пленок требует решения задачи нанесения таких пленок на более толстую и прочную пористую подложку.

Расширению возможного применения ядерных фильтров в значительной степени может способствовать использование в качестве основы для фильтров новых полимерных материалов, обладающих более совершенными свойствами. Так, для работы фильтров при более высоких температурах могут быть использованы термостойкие полиарилатные пленки, выдерживающие нагревание до 250-300°C.

Показана возможность получения ядерных фильтров на основе фторосодержащих полимеров, более устойчивых к химически агрессивным средам. Получен положительный опыт нанесения на ядерные фильтры тонких металлических покрытий, придающих им ряд специфических свойств (например, хорошо отражающую способность).

Для придания ядерным фильтрам специальных свойств направленным образом можно использовать методику прививок мономеров. Таким путем можно, например, придать ядерным фильтрам ионообменные свойства. Этим же путем можно надеяться получить способ уменьшения размеров пор ядерных фильтров до ангстремного диапазона. Все эти пути улучшения характеристик ядерных фильтров получают более широкое развитие при использовании для облучения пленок нового ускорителя У-400, который, кроме того, значительно повысит скорость облучения пленок тяжелыми ионами.

Все перечисленное выше показывает, что имеется очень большое поле деятельности по развитию и усовершенствованию методов получения и улучшению свойств и характеристик ядерных фильтров. Вместе с тем, весьма актуальной является задача создания базы для более крупномасштабного производства основных типов ядерных фильтров по разработанной в ЛЯР ОИЯИ технологии. Это исходит из потребности народного хозяйства в ядерных фильтрах и невозможности их серьезного внедрения без обеспечения выпуска нужного количества фильтрующих материалов.

Работа выполнена коллективом сотрудников Отдела прикладной ядерной физики ЛЯР ОИЯИ и сотрудников смежных организаций, участвовавших в разработке технологического оборудования и испытании образцов ядерных фильтров.

Л и т е р а т у р а :

1. Акашев Г.Н. и др. Депонированная публикация ОИЯИ, Б1-14-8214, Дубна, 1974г.
2. Northcliffe L.C., Schilling E.F. Nucl. Data Table, 1970, A7, 233.
3. Третьякова С.П. и др. Препринт ОИЯИ, 12-9326, Дубна, 1976г.
4. Третьякова С.П. и др. Препринт ОИЯИ, Р14-10235, Дубна, 1976г.
5. Акашев Г.Н. и др. Депонированная публикация ОИЯИ, Б3-14-8232, Дубна, 1974г.
6. Барашников В.С. и др. Депонированная публикация ОИЯИ, В1-14-7857, Дубна, 1974г.
7. Мchedlishvili B.V. и др. Коллоидный журнал, 1978, т. XL, №1, с. 59.
8. Веркин Б.И. и др. "Инж.-физ. журнал", 1971, т. 20, № 6, 965-972

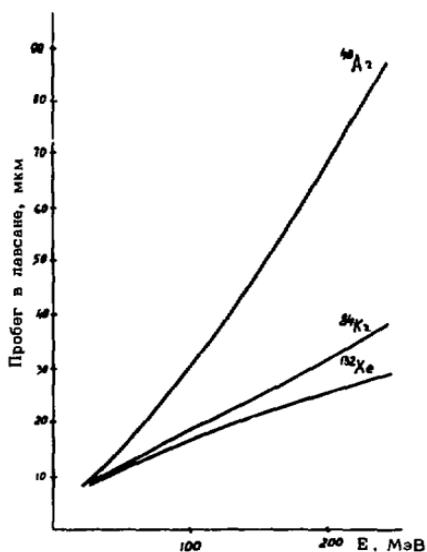


Рис. 1. Зависимость пробега тяжелых ионов в лакасе от их энергии.

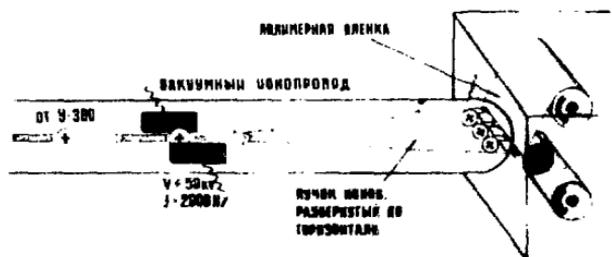


Рис. 2. Схема облучения полимерных пленок тяжелыми ионами.

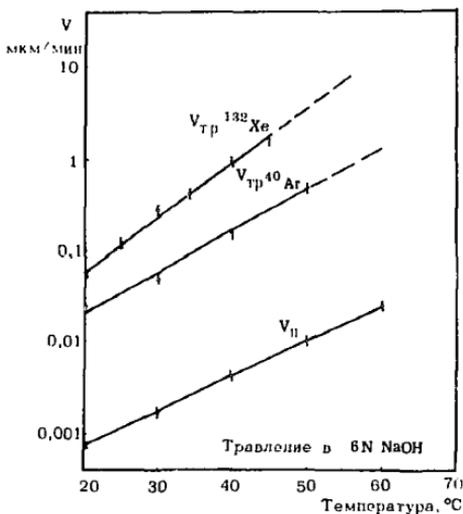


Рис. 3. Скорость травления деструктурированного ($V_{Тр}$) и исходного ($V_{П}$) лавсана в щелочи ($6N NaOH$) при различной температуре (Xe - облучение ионами ксенона, Ar - облучение ионами аргона).

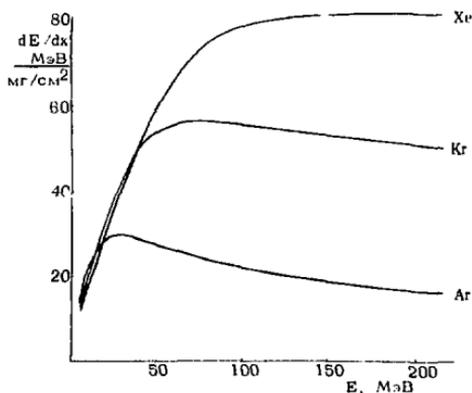


Рис. 4. Удельные потери энергии ($\frac{dE}{dx}$, $\frac{MeV}{cm^2}$) ионов аргона, криптона и ксенона в зависимости от их энергии.

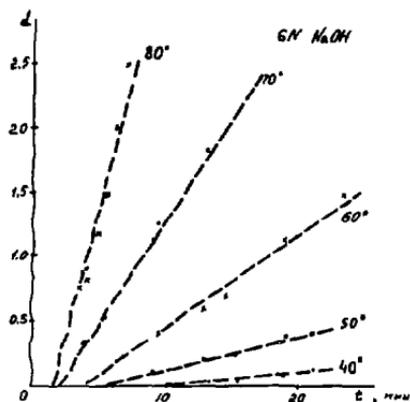


Рис. 5. Время травления лавсановой пленки в щелочи ($6N NaOH$), необходимое для получения пор заданного диаметра. Пленка облучена ионами ксенона.

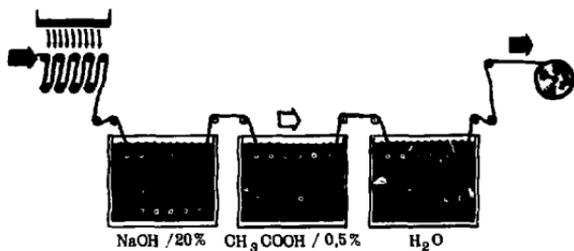


Рис. 6. Схема химической обработки облученной лавсановой пленки.

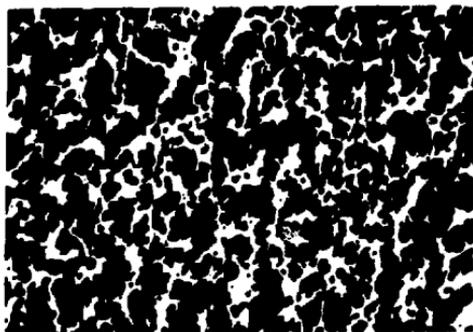


Рис. 7. Микроструктура фильтров фирмы "Миллипор".

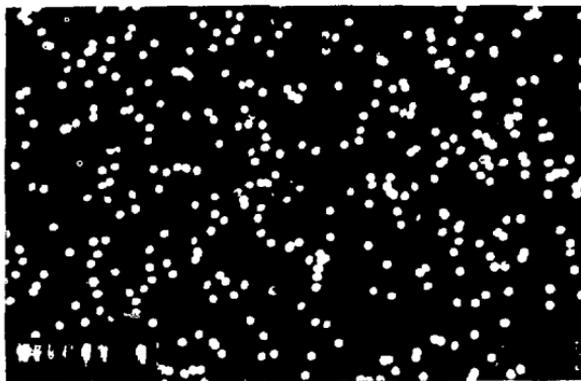


Рис. 8. Микроструктура ядерных фильтров.

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ НА СВОЙСТВА СВЕРХПРОВОДНИКОВ

С. И. Цыркин

ФТИ им. А. Ф. Иоффе АН СССР, Ленинград

В последние годы резко увеличился интерес к вопросам, связанным с влиянием облучения на свойства сверхпроводников. Это объясняется следующими основными причинами:

1. Все увеличивающаяся потребность в сверхпроводящих устройствах, предназначенных для работы в интенсивных радиационных полях, требует прогнозирования поведения этих устройств во времени.

2. На свойства сверхпроводников большое влияние оказывают структурные дефекты. Облучение же является чрезвычайно универсальным и хорошо контролируемым способом создания дефектов разнообразной природы. Благодаря этому, проводя облучение в заданных условиях и сопоставляя данные о возникших радиационных дефектах с наблюдаемыми изменениями сверхпроводящих характеристик, можно, в принципе, разобраться в механизме влияния дефектов структуры.

3. Облучение может приводить к повышению критических параметров (см. ниже) сверхпроводящего материала, а также к созданию новых сверхпроводящих систем.

Рамки настоящего доклада не позволяют рассмотреть всю проблему радиационного воздействия на свойства сверхпроводников и заставляют ограничиться обсуждением физических основ и некоторых перспектив этого воздействия с остановкой в основном на случаях, когда облучение производится ионами и пробег ионов не превосходит толщины образца (ионная имплантация).

1. Критические параметры сверхпроводников^{1/1}. Влияние дефектов на критические параметры

1.1. К р и т и ч е с к а я т е м п е р а т у р а

1.1.1. Сверхпроводящий переход

При охлаждении сверхпроводников их сопротивление, начиная с некоторой температуры, обращается в нуль. За критическую температуру T_c принимает такую, при которой сопротивление образца

равно половине от R_n - значения сопротивления в нормальном состоянии.

По существующим представлениям сверхпроводимость возникает в результате попарного объединения электронов с энергиями вблизи границы Ферми и с противоположными импульсами и спинами в связанные состояния, в так называемые куперовские пары. Это возможно тогда, когда результирующее взаимодействие между двумя электронами носит характер притяжения. Во всех обнаруженных до сих пор на опыте случаях сверхпроводимости притяжение между двумя электронами обусловлено обменом фонанами между ними (электрон-фононное взаимодействие).

1.1.2. Влияние дефектов на T_k

Для оценки влияния различных факторов на T_k чаще всего пользуются следующей формулой:

$$T_k \approx \frac{\Theta_D}{1,45} \exp\left(-\frac{\lambda + 1}{\lambda - \mu^*(1 + 0,62\lambda)}\right), \quad (1)$$

где μ^* - псевдопотенциал кулоновского взаимодействия; λ - константа электрон-фононного взаимодействия, приближенно определяемая соотношением $\lambda = N(0)\langle I^2 \rangle / M\langle \omega^2 \rangle$; $N(0)$ - плотность состояний у границы Ферми, M - масса иона металла, $\langle \omega^2 \rangle$ - среднее по фононному спектру значение квадрата частоты фонона, I - матричный элемент электрон-ионного взаимодействия, Θ_D - температура Дебая. Из более общего рассмотрения следует, что определяющее влияние на T_k оказывает функция вида $\alpha^2(\omega)F(\omega)$, где α^2 - мера электрон-фононного взаимодействия, а $F(\omega)$ - плотность состояний в фонон-ном спектре.

Влияние дефектов на T_k проявляется на опыте чаще всего за счет действия следующих механизмов:

а. Рассеяние электронов на дефектах приводит к уменьшению средней длины свободного пробега $\bar{\ell}$, а сами дефекты могут влиять на число валентных электронов, приходящихся на атом, (e/a), и на величину атомного объема $V_{ат.}^*$. Изменения величин $\bar{\ell}$, e/a и $V_{ат.}^*$ могут сказываться на структуре электронного спектра, то есть на величине $N(0)$.

* В частности, за счет появления в искаженной дефектами решетке значительных механических напряжений.

б. Дефекты, особенно в больших концентрациях, должны оказывать влияние на фононный спектр и на характеристики электрон-фононного взаимодействия.

в. Следует также ожидать изменений T_K , при изменении ближнего порядка, при образовании, например, в результате облучения других кристаллических модификаций (тем более, новых химических соединений) с иными свойствами электронной и фононной систем.

Обширный экспериментальный материал^{/2/} и определенные теоретические соображения^{/3/} говорят о том, что если образование дефектов ведет к понижению стабильности решетки или к появлению термодинамически неустойчивых или метастабильных фаз, то такая ситуация может благоприятствовать существованию сверхпроводимости и, в частности, повышению T_K .

1.2. К р и т и ч е с к о е м а г н и т н о е п о л е

1.2.1. Магнитные свойства сверхпроводников

В так называемых сверхпроводниках I рода (все чистые металлы, кроме Nb, V и Tc) внешнее магнитное поле, до тех пор пока оно меньше некоторого H_{KT} , выталкивается из объема сверхпроводника. По достижении величины H_{KT} (термодинамическое критическое поле), зависящей от T_K и температуры, поле полностью проникает в образец, и одновременно восстанавливается нормальное сопротивление R_n .

Сверхпроводники II рода (перечисленные 3 металла, сверхпроводящие сплавы и соединения) ведут себя аналогично сверхпроводникам I рода в малых полях, но начиная с некоторого H_{K1} (нижнее критическое поле) и до поля H_{K2} (верхнее критическое поле) при сохранении нулевого сопротивления энергетически выгодным является частичное проникновение поля в сверхпроводник в виде отдельных нитей магнитного потока. Каждая нить состоит из сердцевинки диаметром порядка размеров куперовской пары, в пределах которой металл находится в нормальном состоянии, и окружающего сердцевинку сверхпроводящего токового вихря. Когда внешнее поле становится равным H_{K2} , оно полностью проникает в образец, и одновременно восстанавливается нормальное сопротивление. Поле H_{K2} определяется как

$$H_{k_2} = \alpha \sqrt{2} H_{KT} = \sqrt{2} (\alpha_0 + 7,5 \cdot 10^3 \rho_n \gamma^{1/2}) H_{KT}(T), \quad (2)$$

где α - так называемый параметр Гинзбурга-Ландау, α_0 - значение α для бездефектного материала, ρ_n - нормальное удельное сопротивление, γ - постоянная Зоммерфельда, линейно связанная с $N(0)$.

1.2.2. Влияние дефектов на критические поля

Из формул (1) и (2) видно, что дефекты могут сказываться на величине критических полей как за счет воздействия на T_K , так и путем влияния на среднюю длину свободного пробега.

1.3. К р и т и ч е с к и й т о к

1.3.1. Происхождение критического тока

В сверхпроводниках I рода критическим, разрушающим сверхпроводимость является ток, создающий на поверхности образца поле, равное H_{KT} . В сверхпроводниках II рода дело обстоит сложнее. Ток, проходящий через сверхпроводник II рода, находящийся в поле $H_{K1} < H < H_{K2}$, перпендикулярном направлению тока, будет взаимодействовать с нитями потока. Под действием силы Лоренца $\vec{F}_A = \vec{j} \times \vec{B}$ (\vec{j} - плотность тока, \vec{B} - магнитная индукция) нити придут в движение, и это будет сопровождаться диссипацией энергии, т.е. появлением сопротивления. Воспрепятствовать этому можно, закрепив нити. Оказывается, что центрами закрепления ("центрами пиннинга") могут служить различные структурные дефекты при условии, что их размеры близки к размеру сердцевинки нити. Практически центрами пиннинга могут служить дислокации и дислокационные петли, выделения второй фазы (в том числе газовые пузырьки или поры), границы зерен и т.д. До сих пор еще не ясно, какие именно дефекты и в каких условиях наиболее эффективны в качестве центров пиннинга.

Из сказанного ясно, что критической плотностью тока будет такая, при которой плотность лоренцовой силы F_A становится равной плотности силы пиннинга F_n , действующей на единицу объема системы нитей.

1.3.2. Влияние дефектов на критический ток

Помимо того, что дефекты могут влиять на критические температуру и поле (и тем самым – на критический ток), а некоторые из них могут служить центрами пиннинга, существование дефектов может сказываться на механизмах взаимодействия нитей с центрами пиннинга.

2. Ионное облучение сверхпроводников

Среди различных вариантов облучения, которые могут быть использованы применительно к сверхпроводникам, наибольший интерес представляет облучение ионами (во многих случаях – тяжелыми ионами). Это связано с рядом особенностей именно этого способа облучения.

2.1. Некоторые особенности ионного облучения

1. Применяя ионы с большим эффективным зарядом $Z_{эфф}$ большой массы, можно обеспечить максимальную эффективность в образовании первичных атомов отдачи и наибольшего числа смещений на атом. Благодаря этому можно, например, в тех случаях, когда важна именно эта величина, а не распределение первичных атомов по энергиям, заменить продолжительное облучение нейтронами существованием более коротким облучением ионами.

2. Облучение ионами особенно пригодно для создания термодинамически неравновесных, метастабильных систем (структурных модификаций, соединений), которые в ряде случаев никаким иным путем созданы быть не могут. Так, например, имплантированные во время облучения атомы могут повышать стабильность фаз или соединений, неравновесных при данных условиях (например, высокотемпературных), но случайно возникших в процессе облучения. Такая стабилизация может быть объяснена замещениями основных атомов в узлах решетки или изменениями электронного или фононного спектров и образованием дополнительных мод, или, наконец, возникновением локальных механических напряжений в решетке. Имплантация может приводить также к образованию бинарных или более сложных систем с композицией, не ограниченной обычными пределами растворимости. Выше

уже отмечалось, что понижение термодинамической устойчивости благоприятно для возникновения сверхпроводимости или, если последняя уже существует, для повышения T_c .

Радиационные дефекты и, в частности, имплантированные атомы даже при сохранении фазового состава могут вызывать появление особенностей в электронном и фононном спектрах, существенных для сверхпроводящих характеристик облучаемого материала.

4. В результате имплантации могут образовываться новые стабильные сверхпроводящие соединения.

5. Осуществляя заданное пространственное распределение имплантированных атомов, комбинируя их природу (атомы сверхпроводника, ферромагнетика и т.д.) и природу мишени (металл, полупроводник, сегнетоэлектрик и т.д.), можно, в принципе, создавать сверхпроводящие системы с огромным разнообразием свойств, представляющие во многих случаях очень большой интерес.

6. За счет имплантации ионов определенного типа можно очень точно корректировать стехиометрию сверхпроводящих соединений или создавать дозированные отклонения от нее.

7. Наведенная радиоактивность даже при облучении ионами очень больших энергий (при условии, что заряды ядер ионе и мишени не слишком малы) или низка или вообще отсутствует.

2.2. Облучение ионами инертных газов

Некоторые специальные возможности связаны с облучением сверхпроводников инертными газами. Так, например:

а. В режиме имплантации ионы на своем пути в мишени до остановки создают структурные нарушения, и это сказывается на свойствах облучаемого сверхпроводника. Для того чтобы отделить влияние чуждого структурных нарушений от эффектов, связанных со спецификой имплантированных атомов, целесообразно дополнительно исследовать влияние имплантации ионов инертного газа, близкого по расположению в таблице Менделеева к атомам, имплантация которых является предметом основного исследования.

б. В образце, имплантированном инертным газом, атомы последнего образуют твердый раствор в решетке. Если нагреть такой образец до температуры, при которой атомы газа приобретают подвижность, то они вследствие крайне малой растворимости инертных

газов будут объединяться в пузырьки правильной формы^{/4/}. Варьируя концентрацию внедренного газа и температуру отжига, можно изменять размер пузырьков, доводя его, в частности, до такой величины, когда пузырьки могут служить центрами пиннинга в сверхпроводнике, повышая критический ток.

2.3. Энергии ионов

Энергии ионов, используемых для облучения сверхпроводников, лежат в очень широком интервале $10^3 - 10^{10}$ эВ. Большие ($> 10^6$ эВ) энергии имеют то специальное достоинство, что они позволяют работать не с пленками, а с более массивными образцами. За счет этого, во-первых, уменьшается неопределенность, которую нередко могут вносить в наблюдаемые результаты свойства поверхности образца, и, во-вторых, устраняется влияние подложки, упругие свойства и температурный коэффициент расширения которой могут сильно отличаться от аналогичных характеристик пленки. Кроме того, необходимость облучения сверхпроводников тяжелыми ионами больших энергий может возникнуть в том случае, когда требуется образование больших по размерам кластеров дефектов, которые могли бы служить эффективными центрами пиннинга. Это возможно лишь в том случае, если среди первичных смещенных атомов имеются такие, которые получили от бомбардирующих ионов достаточно большую энергию^{/5/}.

3. Обзор некоторых экспериментальных работ

Для иллюстрации рассмотрим теперь некоторые экспериментальные работы, посвященные облучению сверхпроводников. Преимущественно будут обсуждаться результаты, касающиеся влияния ионного облучения на T_c . Такой выбор диктуется не только ограниченностью рамок доклада, но и тем, что именно этот аспект проблемы, хотя и наименее исследованный к настоящему времени, является наиболее интересным и обещающим.

3.1. Влияние облучения на критическую температуру

3.1.1. Непереходные металлы

В работе^{/6/} изучалось влияние имплантации гелия на сверхпроводящие свойства тонких индиевых пленок. Облучение проводилось при комнатной температуре ионами He^+ с энергией 7-10 кэВ, дозами

до $1,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Zn является очень удобным объектом для изучения имплантации, т.к. если облучение проводится при $T_{\text{ком}}$, то вследствие того, что температура плавления Zn составляет всего лишь 155°C , практически все структурные нарушения отжигаются в ходе облучения.

Как показали структурные исследования, подавляющая часть внедренных атомов Ne объединялась в пузырьки со средним диаметром $\sim 100\text{\AA}$ и лишь небольшая часть образовывала твердый раствор внедрения с концентрацией $\text{Ne} > 0,1\%$. $T_{\text{к}}$ пленки слабо возрастала с ростом дозы (при $D_{\text{макс}} = 1,8 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ рост $T_{\text{к}}$ составлял $\approx 0,14 \text{ K}$), и это хорошо коррелировало с существенно более сильным ростом нормального сопротивления, т.е. с уменьшением средней длины свободного пробега электронов $\bar{\ell}$.

Примером более сильного повышения $T_{\text{к}}$, вызванного имплантацией, являются результаты работы [7], в которой исследовалось влияние низкотемпературной имплантации монов Zn^+ и Zn^{2+} с энергией 150 кэВ на критическую температуру Zn -пленок ($d \approx 450\text{\AA}$), как предварительно отожженных, так и разупорядоченных осаждением на холодную подложку. Максимальная концентрация C внедренных атомов составляла $\sim 1,8 \text{ ат.}\%$. На рис. 1 и 2 показано, как меняется $T_{\text{к}}$ и остаточное сопротивление $\rho_{\text{н}}$ (мера разупорядочения) с концентрацией внедренных атомов C .

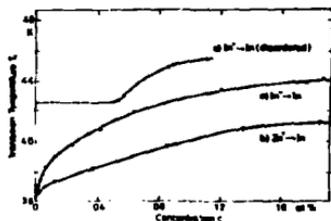


Рис. 1. Зависимость критической температуры Zn -пленок от концентрации внедренных атомов.

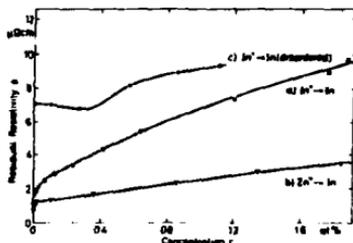


Рис. 2. Зависимость остаточного сопротивления Zn -пленок от концентрации внедренных атомов.

На кривых наблюдается значительное увеличение $T_{\text{к}}$ по сравнению со значением для массивного металла ($3,63 \text{ K}$) и очень близкая корреляция между ходом кривых $T_{\text{к}}(C)$ и $\rho_{\text{н}}(C)$, что говорит о не-

посредственной связи между ростом T_K и разупорядочением. Авторы интерпретируют это как следствие того, что разупорядочение может приводить к смягчению фононного спектра и росту константы электрон-фононного взаимодействия. Представляется, что основную роль в росте T_K играет второй из этих факторов, т.к. сопоставление низкотемпературных теплоемкостей для разупорядоченных и отожженных пленок Sn и Pb показало отсутствие дополнительных низкочастотных фононов.

В работе^{8/} изучалось влияние низкотемпературной имплантации протонов и дейтронов в тонкие пленки Al, что, как известно, может приводить к росту T_K от 1,3 до 7 К. Образцы были выполнены в виде туннельных диодов (Al-Al₂O₃-Al), и путем измерения туннельных характеристик можно было найти вид функции $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ (см. выше). Оказалось, что особенности фононного спектра у чистого и имплантированного Al хорошо совпадали и дополнительных мягких мод не наблюдалось. Таким образом, имплантация влияла на константу электрон-фононного взаимодействия. Пока, однако, остается неясным, за счет чего это происходит: за счет роста $N(0)$ вследствие появления в решетке атомов H (D) или за счет эффекта разупорядочения.

3.1.2. Переходные металлы

Для переходных металлов характерно то, что плотность электронных состояний меняется у них немонотонным образом, отличаясь наличием пиков и провалов. В некоторых случаях один из таких пиков может располагаться у самой границы ферми, у других металлов - в некотором отдалении от нее.

На опыте такие переходные металлы, как Mo, W, Re, имеющие низкие исходные T_K , при облучении в режиме имплантации в зависимости от природы имплантируемых ионов могут как увеличивать, так и уменьшать T_K , тогда как другие металлы, такие как Nb, V, Ta, о которых известно, что их электронные спектры имеют особенности вблизи границы ферми, как правило, понижают T_K в результате облучения.

Подробные исследования влияния имплантации различных ионов с энергиями 50-400 кэВ на T_K чистых пленок Mo были проведены в работе^{9/}. Максимальная доза составляла 10^{17} см⁻².

Определяющим фактором, влияющим на знак изменения T_K , оказалась разность электроотрицательностей χ_{Mo} и имплантируемого иона. В случае, если $\chi_{иона} > \chi_{Mo}$ (например, при имплантации S, N), происходит передача заряда в d -зону Mo, и это ведет к повышению T_K . При обратном соотношении между электроотрицательностями T_K понижается. Сходные результаты получены и на пленках W и Re. В этой же работе было показано, что в случае переходных металлов с относительно высокими исходными T_K (Nb, V, Ta), где имплантация по большей части понижает T_K (см. рис.3), химические особенности бомбардирующих ионов не играют заметной роли. Определяющим же фактором являются радиационные повреждения и связанное с ними дополнительное рассеяние электронов, приводящее к соответствующему снижению T_K $N(0)$.

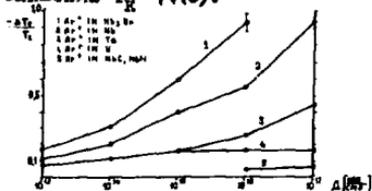


Рис.3. Зависимость относительного понижения T_K переходных металлов и соединений от дозы.

3.1.3. Образование новых фаз и химических соединений

Замечательный пример того, как облучение может благоприятствовать сверхпроводимости, дает имплантация водорода (дейтерия) в Pd и в сплавы Pd с благородными металлами.

Сам Pd не является сверхпроводником. Причина этого обычно усматривается в том, что, находясь в 8-й группе таблицы Менделеева, Pd обладает очень сильным парамагнетизмом, имея в d -зоне электроны с нескомпенсированными спинами. Более того, за счет спиновых флуктуаций в нем могут возникать области локального магнитного упорядочения.

Насыщенный водородом до концентрации $H/Pd \approx 0,7$ сам Pd становится диамагнетиком за счет перехода электронов водорода в d -зону Pd и подавления тем самым спиновых флуктуаций. Это и рассматривается как причина того, что при таких концентрациях внедренного H (D) Pd становится сверхпроводником. Дальнейшее увеличение отношения H/Pd (до ~ 2) может быть осуществлено только путем имплантации при гелиевых температурах 10^4 , когда внедренные атомы H(D) не имеют возможности диффундировать к поверхности и выходить из образца. С ростом концентрации растет T_K , достигая при

некоторой концентрации (~ 1) максимума (9 К для водорода и 11 К для дейтерия).

Еще более разительный эффект дает низкотемпературная имплантация Н(Д) в сплавы Pd с Cu, Ag, Au. В этих случаях также имеется некоторый концентрационный оптимум, как по водороду, так и по благородным металлам. В оптимальных условиях получаются T_K , равные 13,6 К для Pd-Au; 15,6 К для Pd-Ag и 16 К для Pd-Cu^{11/}

Окончательная точка зрения относительно того, что следует считать причиной возникновения сверхпроводимости в рассматриваемых системах (помимо подавления спиновых флуктуаций), еще не установилась. Есть предположение, что резкий спад на кривой зависимости T_K от концентрации благородного металла (при оптимальной концентрации водорода), наступающий почти сразу после достижения $(T_K)_{\text{макс}}$ и заканчивающийся исчезновением сверхпроводимости, говорит о том, что происходит структурный переход в несверхпроводящую фазу, а высокие T_K , предшествующие этому переходу, свидетельствуют о метастабильности решетки и о размягчении фононного спектра в преддверии фазового перехода.

Другую причину усматривают в образовании дополнительных высокочастотных оптических мод в фононном спектре^{12/}, связанных с колебаниями легких атомов. Можно думать также, что при всех обстоятельствах существенными являются и изменения электронной структуры, специфически связанные с энергией валентных электронов внедренных атомов.

В работе^{13/} наблюдалось повышение T_K ниобиевых фольг и пленок при имплантации в них ионов N_2^+ с энергией 70 кэВ дозами до $1,3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Имплантация проводилась как при комнатной, так и при повышенных температурах. Максимальная T_K , равная 13 К, достигалась при $T_{\text{обл}} = 600-750^\circ\text{C}$ и концентрациях $N/N_b \sim 0,8$, причем это получалось для пленок с исходной T_K , отнюдь не наивысшей (~ 9 К), а равной 6-8 К. Полученные результаты естественнее всего интерпретировать как образование вследствие имплантации новой фазы - нитрида азота.

3.1.4. Облучение сверхпроводящих соединений

В работе^{14/} монокристаллы карбидов Nb и V ($NbC_{0,77}$ и $V C_{0,87}$) имплантировались при различных температурах ионами C^+ . В первом случае имплантация при $T_{\text{комн.}}$ приводила к повышению T_K

от 3 до 7 К, а последующий отжиг при 1100°C дополнительно повышал T_{K} до 11,6 К. В случае карбида V имплантация при 700°C вела к появлению сверхпроводимости начиная с $T_{\text{K}}=3,2$ К. Структурные исследования методом обратного рассеяния ионов He^+ показали, что в имплантированных областях имело место улучшение стехиометрии.

До сравнительно недавнего времени господствовало мнение о том, что резкое ухудшение сверхпроводящих свойств соединений со структурой A-15, которой обладают наиболее высокотемпературные сверхпроводники из известных к настоящему времени, при облучении их большими дозами нейтронов или ионов обязано сильному разупорядочению и, в частности, нарушению целостности цепочек атомов переходных металлов и образованию так называемой антиструктуры, т.е. обмену положениями атомов переходного и непереходного металлов. Однако опыты по облучению большими дозами до $7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ионов He^+ сверхпроводящих соединений со структурой A-15 (Nb_3Sn , Nb_3Ge , V_3Si , V_3Ge) /15/ показали, что T_{K} облученных образцов, хотя и очень сильно падает, но не доходит до нуля, а выходит на насыщение на уровне нескольких К. Этот результат в сочетании с данными измерений остаточного сопротивления и обратного рассеяния ионов He^+ , а также рентгеноструктурного анализа облученных образцов привел авторов работы к заключению о том, что длина свободного пробега электронов, падающая с ростом дозы, при достаточно больших дозах достигает предельного значения порядка межатомных расстояний. По-видимому, при этих условиях рассеяние электронов настолько сильно размывает структуру электронного спектра, что это ведет к сильному уменьшению $N(0)$ и к наблюдаемому падению T_{K} . Структура же решетки при этом остается в значительной мере неповрежденной, и, таким образом, образование антиструктуры или отклонения от стехиометрии нельзя рассматривать как единственную причину падения T_{K} при больших дозах.

3.2. В л я н и е о б л у ч е н и я н а к р и т и ч е с к о е п о л е

Уже говорилось, что облучение может влиять на величину критического поля в той мере, в какой оно изменяет T_{K} образца и его остаточное сопротивление. Последнее связано с длиной свободного пробега, которая, как мы видели, сама может влиять на T_{K} .

В уже обсуждавшейся работе^{6/} имплантация большими дозами ионов He^+ в Zn -пленки приводила к сильному росту критических полей. Благодаря тому, что T_K пленок в результате облучения менялась очень мало, изменение критического поля можно было практически целиком отнести за счет изменения длины свободного пробега, вызванного рассеянием электронов на атомарно растворенном He и гелиевых пузырьках. Наблюденная на опыте связь между изменениями критического поля и \mathcal{E} оказалась в хорошем согласии с предсказаниями теории.

3.3. Влияние облучения на критический ток

Изменения критического тока J_K , вызванные облучением, если они не являются простым следствием влияния облучения на T_K и H_K (как это часто бывает), могут быть обязаны также образованию в результате облучения новых центров пиннинга, дополнительных к уже имевшимся в образце. В наиболее чистом виде такая ситуация реализуется в случае Nb и других чистых металлов, структура которых наименее критична для T_K и H_K по сравнению со сверхпроводящими сплавами и соединениями.

В работе^{5/} наблюдалось существенное (в несколько раз) увеличение J_K ниобиевых фольг в результате облучения их ионами N^{14} с энергией ~ 25 МэВ, дозами до $3 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$. Интересно при этом отметить, что облучение того же Nb ионами D^+ с энергией 15 МэВ, дозами до $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ не сказывалось на величине J_K ^{16/}, что, по-видимому, объяснялось тем, что в этом случае энергия, передаваемая ионами первичным смещенным атомам, была недостаточна для образования кластеров дефектов досточной протяженности.

Влияние облучения протонами с энергией 3 МэВ на J_K тонких слоев Nb_3Sn исследовалось в работе^{17/}. С ростом дозы до $7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ наблюдался рост J_K , достигавшего величины, в 3-4 раза большей, чем у образцов, обработанных по обычной технологии. При дальнейшем росте дозы до $2,9 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ J_K падал в 500 раз, что объяснялось, по-видимому, перекрытием центров пиннинга, образующихся при облучении.

Отдельный интерес представляет ситуация, которая может возникнуть при имплантации сверхпроводников II рода большими дозами инертных газов. Так, в^{18/} фольги из Nb (предварительно отожжен-

ние) равномерно насыщались гелием до концентрации 0,5 ат.% путем облучения на ускорителе при максимальной энергии ионов 3,2 МэВ. Облучение сильно (~ на 2 порядка) повышало J_K при практически неизменной T_K , а трансмиссионная электронная микроскопия показала появление большого числа радиационных дефектов, в основном в виде дислокационных петель. При отжиге, начиная с 900°C, в образцах обнаруживались газовые пузырьки, размеры которых росли с ростом $T_{отж}$. При 1000°C средний диаметр их доходил до ~100Å, и они успешно выполняли роль центров пиннинга (см. рис. 4), что видно из изменения характера кривых $J_K(h = H/H_{K2})$, в частности из возрастания J_K при больших полях (рис. 5).



Рис. 4. Газовые пузырьки в Nb, насыщенном He и отожженной при 1000°C.

3.4. Создание элементов слабой связи

Ионное облучение сверхпроводников начинает делать уже первые шаги в области практических приложений. Примером в этом отношении может служить создание сверхпроводящих элементов так называемой слабой связи. Подобные элементы, в основе действия которых лежит способность куперовских пар туннелировать как целое через тонкие несверхпроводящие мостики, находят себе все большее число приложений, главным образом в измерительной технике высокой чувствительности и микроэлектронике. В работе^{/19/} такой элемент создавался в виде узкой пленки из Mo, подвергнутой двум последовательным имплантациям ионов N^+ или S^+ (см. рис. 6). Первая имплантация, проведенная по всей поверхности пленки, приводит к росту T_K от исходной (< 1 К) до 1,7 К. После этого узкий перешеек посредине пленки закрывают маской, и приводится вторая имплантация большей дозой. В результате области, расположенные по обеим сторонам от маски ("берега"), повышают свою T_K до 4 К, что и создает типичный элемент слабой связи (2 "берега", разделенных "мостиком"), отличающийся специфическими характеристиками, которые и используются в различных приложениях.

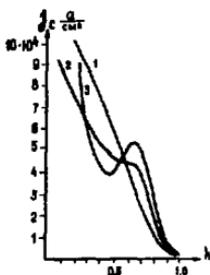


Рис.5. Зависимость критической плотности тока Nb -фольг, насыщенных He и отожженных: кривая 1 - при $800^{\circ}C$, 2 - при $900^{\circ}C$, 3 - при $1000^{\circ}C$.

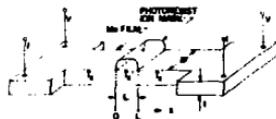


Рис.6. Схема элемента слабой связи, полученного ионной имплантацией.

4. Заключение

Применение мощного облучения, как мощного средства воздействия на свойства сверхпроводников и как инструмента для изучения этих свойств, имеет очень широкие перспективы, но, несмотря на большое число уже полученных данных и интересных результатов, исследования в этой области практически еще только начинают выходить из начальной стадии. Следует подчеркнуть, что эффективность и соддержательность результатов, получаемых в работах по облучению сверхпроводников, находятся в прямой зависимости от того, насколько традиционные измерения основных сверхпроводящих параметров облученных образцов увязываются с исследованиями структурных характеристик, особенностей электронного и фононного спектров и т.д., с использованием богатого арсенала современных экспериментальных возможностей.

К наиболее значительным результатам применения мощного облучения сверхпроводников, на которые можно рассчитывать, следует отнести, по-видимому, следующие:

- 1) создание и изучение сильно разупорядоченных систем со свойствами электронной и фононной систем, отличающимися от исходных, в том числе систем метастабильных, термодинамически неустойчивых;
- 2) повышение критических параметров существующих сверхпроводников;

3) создание новых сверхпроводящих систем, не создаваемых никакими иными способами;

4) реализация способов получения заданного пространственного распределения сверхпроводящих свойств в образцах и чувствительного контроля композиции сверхпроводящих материалов.

Литература

1. Буккаль В. Сверхпроводимость. "Наука", М., 1975.
2. Постников В.С. Физ.хим. обраб. материалов. 1977, 5, с.69.
3. Проблемы высокотемпературной сверхпроводимости / под ред. В.Л.Гинзбурга/. "Наука", М., 1977.
4. Томсон М. Дефекты и радиационные повреждения в металлах. "Мир", М., 1973.
5. Цыпкин С.И., Чуднова Р.С. ФТТ, 1971, 13, с.3088.
6. Фогель Н.Я. и др. ЖЭТФ, 1974, 66, с.625.
7. Bauriedl W. e. a. Phys.Lett., 1976, 57A, p.282.
8. Dumoulin L.e.a.C.R., 1976, B285, p.283,10.
9. Meyer O.e.a. The Applications of Ion Beams to Metals. ed. Picreaux, N.Y., 1974.
10. Stritzker B., Buckel W. Z.Phys., 1972, 1, p.257.
11. Stritzker B. e.a. Phys.Lett., 1975, 1A, p.147.
12. Ganguli B. Z.Phys., 1973, 265, p. 433.
13. Дравин В.А. и др. Крат. сообщ. физ. ФИАН, 1977, 1, с.12.
14. Geerk J. e.a. IEEE Trans.Magn., 1977, v.Mag-13,1, p.724.
15. Dynes R. e.a. IEEE Trans.Magn., 1977, v.Mag-13,1, p.640.
16. Coffey B. e.a. Phys.Rev., 1967, 155, p.355.
17. Андреев В.С. и др. Докл. 18 Всесоюзн. Совец. по физике и технике низк. температур. Киев, 1974, с.244.
18. Волков М.П. и др. ФНТ, 1977, 4, с.1,32.
19. Harris E. e.a. IEEE Trans.Magn., 1977, v-13, 1, p.724.

Медико-биологические аспекты

БИОФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ ТЕРАПИИ ЗЛОКАЧЕСТВЕННЫХ НОВООБРАЗОВАНИЙ С ПОМОЩЬЮ БЫСТРЫХ ПЕЛЕТРОНОВ.

Х. Абель

Центральный институт молекулярной биологии АН ГДР

Введение

К концу 50-х годов стало ясно, что возможности терапии рака с помощью фотонов и электронов практически исчерпаны. Первичные опухоли оказались чрезвычайно устойчивыми к этим видам излучений. Причина этого — высокая гетерогенность по радиочувствительности составляющих опухоли клеток.

В эти же годы была разработана методика, позволяющая размножать в искусственных условиях клетки, изолированные от организма млекопитающих. Это создало возможность изучения закономерностей, обуславливающих различия в радиочувствительности составляющих опухоли клеток.

I. Кислородный эффект и его зависимость от ЛПЭ.

Решающее значение в этих исследованиях имело использование для облучения клеток излучений, характеризующихся различными значениями ЛПЭ. После того как в экспериментах с культурами клеток, облучавшихся фотонами и электронами, было установлено, что гетерогенность радиочувствительности опухолевых клеток обусловлена неравномерностью снабжения их кислородом^{/1/}, были начаты работы по выяснению зависимостей между наличием кислорода и радиочувствительностью клеток при действии на них излучений с разной ЛПЭ. Влияние кислорода на радиочувствительность выражали отношением тех доз облучения, которые вызывают одинаковый эффект при действии на клетки, находящиеся в состоянии аноксии и при нормальном кислородном напряжении; это отношение называют кислородным эффектом /КЭ/. Типичная для клеток млекопитающих зависимость между КЭ и ЛПЭ применяемых излучений показана на рис. 1^{/2/}.

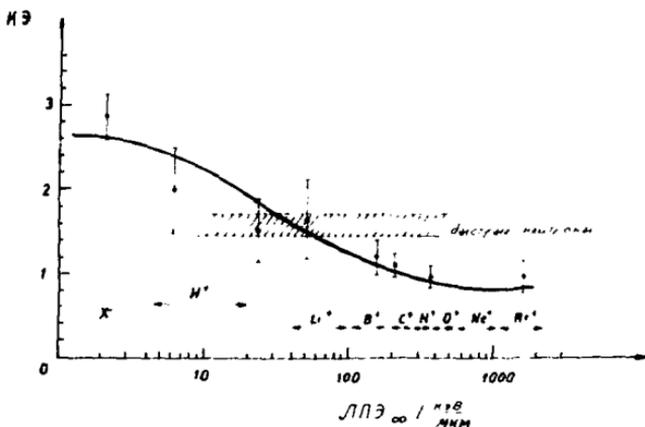


Рис. 1. КЭ в зависимости от вида излучения (ЛПЭ) для T1/T клеток /2/.

Из этого рисунка следует, что при действии на опухоли рентгеновских или гамма-лучей для инактивации клеток, находящихся в состоянии гипоксии, требуется почти в три раза более высокие дозы, чем для инактивации нормально аэрозируемых клеток. Такие дозы, однако, далеко превосходят порог радиостойчивости клеток здоровых тканей, окружающих опухоль, и поэтому не могут быть использованы в целях лучевой терапии. Анализ рисунка, однако, подсказывает и выход из этой ситуации: для лучевой терапии целесообразнее использовать излучения, для которых величина КЭ минимальна. Однако, т.к. опухоли обычно расположены в глубине тела, такие излучения должны обладать большой проникающей способностью. Выполнение этого требования при использовании тяжелых ионов сопряжено с большими затратами; проще и дешевле для этой цели использовать быстрые нейтроны. Действительно, при облучении быстрыми нейтронами в биологических тканях возникают протоны, альфа-частицы и тяжелые ионы, для которых характерна небольшая величина КЭ. Диапазон величин КЭ для быстрых нейтронов с энергиями от 5 до 15 МэВ также показан на рис. 1.

При рассмотрении рис.1 может сложиться впечатление, что фотоны или электроны вообще неприемлемы для целей лучевой терапии опухолей. Но это не совсем так. Дело в том, что в состоянии гипоксии обычно находится лишь небольшая доля опухолевых клеток, причем степень гипоксии от случая к случаю может изменяться. А так как здоровая ткань также подвергается облучению, желательно, чтобы повреждения ее были минимальны. Этим требованиям может удовлетворить использование смешанных пучков, состоящих из излучений, для которых характерны высокие и низкие значения КЭ. Пример зависимости КЭ от соотношения компонентов такого смешанного пучка приведен на рис.2 ^{13/}.

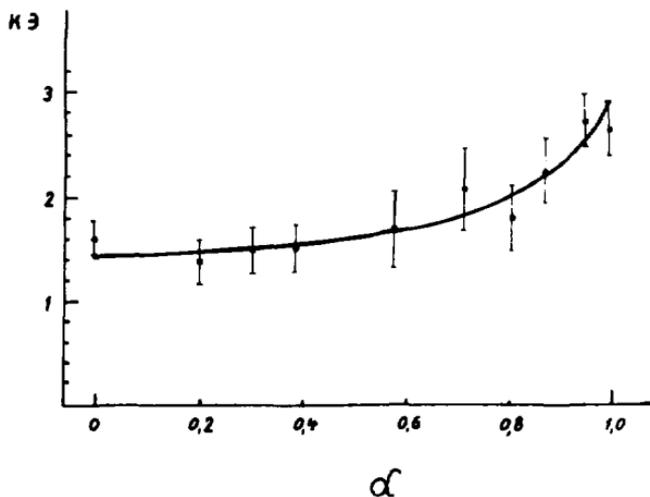


Рис.2. КЭ в зависимости от доли γ -лучей (α) при облучении клеток смешанными пучками нейтронов и γ -лучей ^{13/}.

В этом случае компонентами пучка являлись нейтроны (14 МэВ) и гамма-лучи ⁶⁰Со. По оси абсцисс отложена доля в пучке гамма-лучей /выраженная в относительной дозе/, а по оси ординат - величина

КЭ, характерная для пучка данного состава. Видно, что для пучков, содержащих от 0 до 60-70% гамма-лучей, значение КЭ мало отличается от значения КЭ для чистых нейтронов. Попытки применения в терапевтических целях быстрых нейтронов были предприняты в Англии^{/4/}, а комбинированная гамма-нейтронная терапия впервые была апробирована в ГДР^{/5/}.

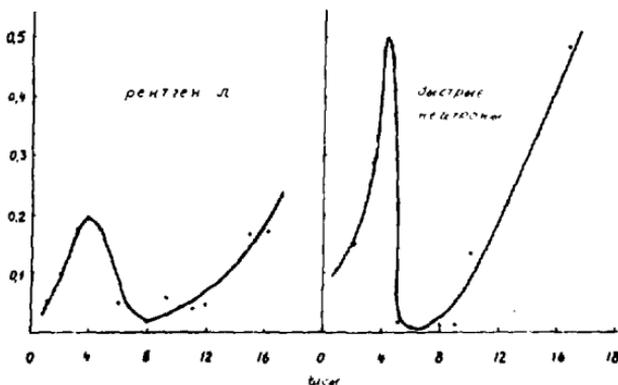
Однако знание зависимости, связывающей радиочувствительность клеток, величину кислородного напряжения и ЛД₅₀ излучений, не может служить единственной основой для дальнейшего совершенствования методов лучевой терапии. Не менее важная роль здесь должна принадлежать представлениям о клеточных и молекулярных механизмах, обуславливающих разную биологическую эффективность рентгеновских лучей и быстрых нейтронов. Некоторые результаты, полученные в этом направлении в нашей лаборатории, приводятся ниже.

2. Связь между инактивацией дочерних клеток и возрастом материнской клетки, облученной рентгеновскими лучами или нейтронами.

Связь между инактивацией дочерних клеток и возрастом материнской клетки, облученной рентгеновскими лучами или нейтронами, изучали на культуре клеток китайского хомячка J79/4 с использованием цейтраферной микроионосъемки^{/6/}. Некоторые результаты этих опытов приведены на рис.3.

Рсс

Рсс



По оси абсцисс отложен возраст /в часах/ материнских клеток во время облучения, по оси ординат – доля облученных клеток, у которых инактивированными оказываются обе дочерние клетки. Видно, что инактивация обеих дочерних клеток после облучения нейтронами наблюдается значительно чаще, чем при действии рентгеновских лучей. Это обусловлено, по-видимому, тем, что при действии нейтронов повреждения обеих нитей ДНК материнских клеток происходят значительно чаще, чем при действии рентгеновских лучей.

3. Разрывы нитей ДНК после облучения клеток нейтронами и рентгеновскими лучами.

Результаты определения выхода двунитевых разрывов ДНК у клеток, облученных нейтронами и рентгеновскими лучами, приведены на рис.4 ⁷⁷.

Видно, что выход двунитевых разрывов после облучения клеток нейтронами примерно в два раза больше, чем при облучении рентгеновскими лучами. Это конечно, только средние значения выхода разрывов. При действии быстрыми нейтронами за образование двойных разрывов ответственны вторично возникающие протоны, альфа-частицы и тяжелые ионы, однако определить вклад каждого из этих компонентов в образование двунитевых разрывов экспериментальным путем практически невозможно.

4. Зависимость выхода разрывов ДНК от ЛПЭ излучений.

Несколько лет назад с использованием циклотрона в Россендорфе и ускорителя тяжелых ионов в Дубне мы начали проводить исследования зависимости выхода однонитевых и двунитевых разрывов ДНК при облучении клеток в культуре от ЛПЭ излучений. Полученные к настоящему времени результаты приведены на рис.5.

Рис.3 Доля (Pss) неспособных к делению дочерних клеток в зависимости от возраста материнской клетки во время облучения.

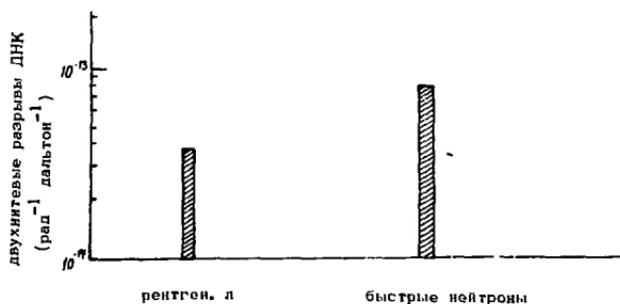


Рис. 4 Выход двуниевых разрывов ДНК у клеток, облученных рентгеновскими лучами и нейтронами (средняя энергия нейтронов 6,5 МэВ).

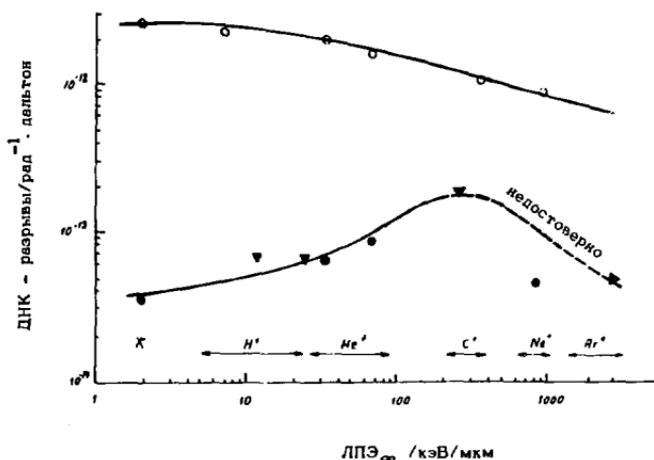


Рис. 5 Выход одностранных разрывов ДНК (светлые символы) и двуниевых разрывов ДНК (темные символы) в зависимости от вида излучения. ∇ - данные Neary^{8/}, \blacktriangleright - данные Dewey^{9/}, \circ и \bullet - наши данные.

На этом же рисунке приведены немногочисленные данные такого рода, полученные другими авторами ^{/8,9/}. Как показано на этом рисунке, выход одностранных разрывов ДНК уменьшается с увеличением ЛПЭ излучений, а выход двустранных разрывов проходит через максимум. Это можно объяснить эффектом насыщения, так как существуют частицы, которые проходя через молекулу ДНК теряют больше энергии, чем необходимо для вызывания двустрannого разрыва. Такого рода данные были положены в основу разработанной нами модели образования разрывов ДНК при облучении. Такая модель позволяет вычислять выход разрывов для вторичных частиц разных энергий, образующихся в биологических тканях при прохождении быстрых нейтронов ^{/10/}.

5. Предсказание значения ОБЭ для быстрых нейтронов.

Для понимания природы ОБЭ быстрых нейтронов недостаточно знать зависимость выхода двойных разрывов от ЛПЭ излучений. Дело в том, что клетки способны репарировать часть разрывов ДНК энзиматическим путем. Эффективность репарации может изменяться от одного вида клеток к другому и может зависеть от условий культивирования. Репарация — это комплексный биологический феномен и пока не поддается строгому физико-математическому описанию. Однако косвенно способность клеток к репарации разрывов ДНК выражается в форме кривой доза-эффект. Предположим, что способность клеток репарировать разрывы ДНК не зависит от того, каким видом излучений эти разрывы были вызваны. Тогда, располагая экспериментальной кривой выживания для одного какого-либо вида излучения, и зная выход разрывов ДНК для этого и какого-либо другого вида излучений, можно рассчитать теоретическую кривую выживания для другого вида излучения ^{/10/}. Ниже на нескольких примерах показано, в какой степени этот полуэмпирический метод согласуется с экспериментальными данными. Разные авторы ^{/11,12/} проводили определение ОБЭ нейтронов энергии 15 МэВ для одной и той же линии клеток, но при разных условиях культивирования. Из нашей полуэмпирической теории ОБЭ следует, что ОБЭ быстрых нейтронов должна увеличиваться с уменьшением чувствительности клеток к гамма-излучению. Экспериментальные данные разных авторов, приведенные в таблице I, не только соответствуют этому правилу, но и хорошо

согласуются со значениями ОБЭ, вычисленными нами. Интересно отметить, что все активно пролиферирующие здоровые ткани обычно отличаются малыми значениями D_0 , и, следовательно, нейтроны для них лишь слегка эффективнее, чем гамма-лучи.

Таблица I. Сопоставление теоретических значений ОБЭ нейтронов с результатами экспериментов, выполненных разными авторами

Чувствительность клеток к гамма-лучам, D_0 , рад	62	85	123	185
ОБЭ теоретическая	1,18	1,26	1,46	1,59
ОБЭ экспериментальная	1,09	1,18	1,42	1,60
Авторы	/II/	/II/	/I2/	/I2/

Особый интерес для лучевой терапии представляет определение зависимости ОБЭ от энергии нейтронов. Ввиду больших затрат, с которыми связано проведение таких исследований, по этому вопросу имеются лишь отдельные экспериментальные данные. В частности, для клеток лейкемии такие данные были получены при облучении в условиях гипоксии и при нормальной аэрации ¹³. Эти данные на рис.6 изображены значками, а кривые показывают результаты расчета, выполненного нами полуэмпирическим способом ¹⁴, результаты расчета опять хорошо соответствуют данным экспериментов.

Хотя в большинстве таких сравнений, проведенных до сих пор, мы получили хорошее соответствие полуэмпирической теории и результатов экспериментов, нередко наблюдались систематические отклонения. Анализ таких отклонений показывает нам, как следует продолжать эту работу.

Нет сомнений, что медицина никогда не сможет обойтись без проведения эмпирических исследований. Но мы считаем, что результаты биофизического анализа могут существенно помочь клиницистам, особенно в планировании режимов облучения, в выборе энергии нейтронов и соотношения нейтронов и гамма-лучей в смешанных пучках, т.е. в тех разделах работы, выполнение которых требует затрат больших средств и времени.

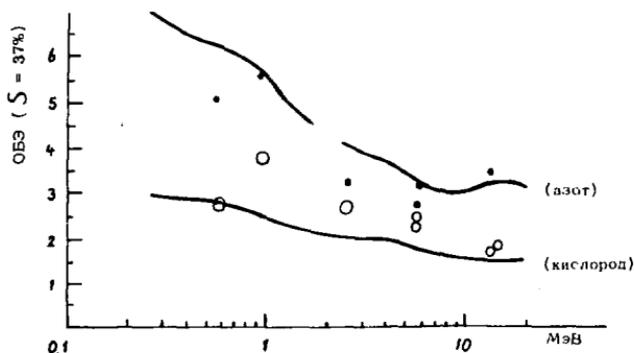


Рис.6 Зависимость ОБЭ нейтронов от величины энергии. Кривые - теоретические значения, рассчитанные по данным о чувствительности клеток к гамма-лучам ^{60}Co . Значки /темные - для облучения в условиях аноксии, светлые - для облучения при наличии кислорода/ - результаты экспериментов /13/.

Пользуюсь случаем сердечно поблагодарить академика Г.Н.Флорова за помощь в работе.

Литература

1. Alper, T. and P. Howard-Flanders, Nature/London 178, 979 (1956)
2. Todd, P., Rad.Res.Suppl. 7, 196, 1967
3. Railton, R. Porter, D., Lawson, R.C. and W.J. Hannan, Int.J.Radiat.Biol. 25, 121 (1974)
4. Catterall, M., Bewley, D.K. and J. Sutherland, British Medical Journal, 1977
5. Eichhorn, H.-J. und A. Lessel, Grundlagen der Neutronentherapie, Akademie-Verlag Berlin, 1975

6. Schwarz, K. Laborbericht AdW der DDR/ZIM 1978
7. Kampf, G., Regel, K., Eichhorn, K. und H. Abel, *studia biophysica*, 61, 1977
8. Neary, G.J. et al. *Int.J.Radiat.Biol.* 18, 25, 1970
9. Dewey, D.L. *Int.J.Radiat.Biol.* 12, 497, 1967
10. Günther, K., Schulz, W. und M. Leistner, *studia biophysica*, 61, 1977
11. Takeshita, K. and S. Sawada, in: *Biological Effects of Neutron Irradiations, Proceedings JAEA Vienna 1974*
12. Antoku, S., *Int.J.Radiat.Biol.* 27, 287, 1975
13. Berry, R.J., *Biological Effects of Neutron Irradiation, JAEA 1974*
14. Günther, K. und W. Schulz, Laborbericht AdW der DDR/ZIM 1978

ПРИМЕНЕНИЕ ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ В МЕДИЦИНЕ
(обзор)

О. В. Савченко

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

I. Введение

В настоящее время лучевая терапия самостоятельно или в сочетании с другими методами — хирургией и химиотерапией — используется более чем в половине всех случаев онкологических заболеваний, и существующие тенденции в развитии методов лечения злокачественных опухолей указывают на возрастание этой роли в ближайшем будущем^{1/}.

История развития лучевой терапии всегда была тесно связана с поиском и применением таких проникающих излучений, которые по своим характеристикам наиболее полно соответствовали бы главной цели лучевой терапии — поражению всех опухолевых клеток при минимальном повреждении нормальных тканей, как окружающих опухоль снаружи, так и находящихся внутри опухолевого объема.

На первом этапе развития, продолжавшемся около 50 лет, в лучевой терапии использовались, главным образом, рентгеновские лучи с энергией до 300 кэВ. Высокая поверхностная доза, слабая проникающая способность и повышенная доза на костные ткани, присущие рентгеновским лучам киловольтного диапазона энергий, часто приводили к осложнениям и исключали возможность успешного лучевого лечения глубоко расположенных опухолей.

За последние два десятилетия сформировалась лучевая терапия злокачественных опухолей, использующая гамма-лучи ^{60}Co , электронные пучки и тормозные излучения мегавольтного диапазона энергий. На рис. I показаны глубинные дозные распределения от источников гамма-лучей с энергиями от 60 кэВ до 35 МэВ^{2/}, а также от электронных пучков с энергиями от 7 до 28 МэВ^{3/}. Можно отметить два обстоятельства. Первое — это отчетливо выраженное преимущество дозного распределения мегавольтовой радиации. Для пучков гамма-квантов оно обусловлено большей проникающей способностью и посте-

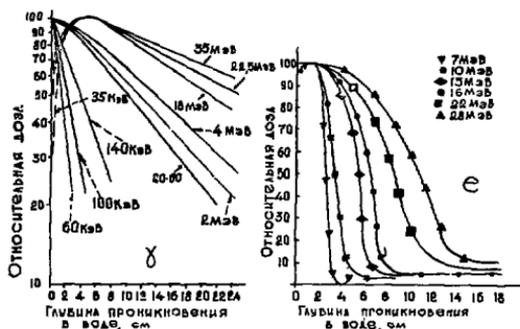


Рис. 1. а) Глубинные дозные распределения от источников гамма-лучей с энергиями от 60 кэВ до 35 МэВ ^{12/}.

б) Глубинные дозные распределения от электронных пучков с энергиями от 7 до 28 МэВ ^{13/}.

пением нарастанием входной дозы, что очень важно для уменьшения лучевой нагрузки на кожу и подкожные ткани. Для электронных пучков характерно быстрое изменение дозы на определенной глубине, что позволяет существенно уменьшить дозу на нормальные ткани за опухолью. Второе — это слабое изменение дозных характеристик в диапазоне энергий гамма-квантов от 22 до 35 МэВ и уменьшение крутизны падения дозы вблизи конца проникновения электронного пучка с ростом энергии электронов. Такое поведение дозных характеристик указывает на бесперспективность для лучевой терапии дальнейшего повышения энергии источников электронно-фотонного излучения.

Существенное улучшение глубинных дозных распределений мегавольтных источников радиации вместе с более точной дозиметрией и оптимизацией планирования лучевого лечения обеспечили значительный прогресс в повышении эффективности лучевой терапии. В таблице I приведены данные увеличения выживаемости пациентов в США с различными типами злокачественных образований при использовании мегавольтной радиации по сравнению с киловольтной ^{14/}.

Однако, несмотря на такие впечатляющие достижения лучевой терапия в отношении некоторых типов злокачественных опухолей, не-

Таблица I. Увеличение выживаемости пациентов с различными типами злокачественных опухолей при использовании мега-вольтовой радиации по сравнению с киловольтной⁴.

Тип опухоли	Выживаемость больных на основании пятилетнего срока наблюдения (в %)	
	Киловольтная радиация	Мегавольтная радиация
Болезнь Ходжкина (лимфогранулематоз)	30 - 35	70 - 75
Рак тела матки	35 - 45	55 - 65
Рак предстательной железы	5 - 15	55 - 60
Рак носоглотки	20 - 25	45 - 50
Рак мочевого пузыря	0 - 5	25 - 35
Рак яичников	15 - 20	50 - 60
Семейные лимфомы	65 - 70	90 - 95
Эмбриональный рак яичка	20 - 25	55 - 70

удачи лучевого лечения все еще остается частым явлением. В таблице 2 приведены сведения по данным на 1974 год о числе пациентов, умерших от рака в США после прохождения курса лучевой терапии, и оценка числа пациентов с различными типами локализаций, у которых смертность может быть отнесена за счет местных и регионарных неудач лучевого лечения, в большей степени характеризующихся как рецидивы опухолей /1/.

Основная причина этих неудач обусловлена невозможностью подвести к опухоли дозу, достаточную для ее полной стерилизации, при сохранении удовлетворительного анатомического и функционального состояния нормальных тканей, находящихся внутри облучаемого объема. Данные таблицы 2 говорят о том, что свыше шестидесяти тысяч пациентов в год для страны с населением около 200 млн. человек можно было бы спасти при дальнейшем улучшении методов и средств лучевой терапии.

2. Потенциальные преимущества пучков тяжелых заряженных частиц для лучевой терапии

Уменьшение лучевой нагрузки на нормальные ткани, окружающие опухоль снаружи, может быть достигнуто с помощью улучшения только геометрических факторов распределения дозы. Это вряд ли удастся сделать с помощью мегавольтовых источников электронов и гамма-квантов. Как это было видно из рис. I, при энергиях свыше 20 МэВ

Таблица 2. Оценка числа пациентов в США, умерших в результате лучевой лучевой болезни¹⁷.

Английские округа	Самые высокие показатели в 1974 году	Оценка числа больных, умерших вследствие лучевой лучевой болезни
Томпкс и шил	7900	3200
Павлов	6300	3700
Монтгомери округ	32760	4600
Вашингтон округ	7600	4700
Томас округ	3400	2000
Ланкастер	10700	9000
Бристоль округ	18000	11000
Мичиган округ	9200	5000
Монт	8100	7700
Колл	5100	3500
Атланта	15400	9000
Алабама	20400	2500
Всего число	205050	64900

продольное распределение дозы от источников гамма-радиации практически не улучшается с ростом энергии, а у электронных пучков одно из основных преимуществ - резкое уменьшение дозы на определенной глубине - постепенно исчезает с уменьшением энергии.

Пучки тяжелых заряженных частиц высоких энергий, таких как протоны, дейтроны, альфа-частицы и более тяжелые ионы, а также отрицательные пи-мезоны позволяют радикально улучшить глубинное дозное распределение. Это связано с тем, что в отличие от электронно-фотонного излучения пучки тяжелых заряженных частиц гораздо слабее рассеиваются в ткани по мере проникновения в глубь тела; они имеют хорошо определенный пробег, линейные передачи энергии (ЛПЭ) таких частиц возрастает с глубиной проникновения, образуя в конце пробега так называемый "пик Брегга", благодаря которому доза излучения, поглощенная в глубинном очаге, может быть в несколько раз больше, чем на поверхности тела, даже при облучении с одного направления.

Пучки отрицательных пи-мезонов имеют дополнительное преимущество. В конце своего пробега они почти со 100% вероятностью захватываются ядрами атомов, составляющих ткань. Так как при этом в ядро вносится очень большая энергия, равная массе покоя пи-мезона (140 MeV), то, как правило, каждый акт поглощения отрицательного пи-мезона сопровождается разрушением ядра и вылетом из него нейтронов, протонов, альфа-частиц и более тяжелых ионов, которые создают большое локальное энерговыделение в непосредственной бли-

зости от места захвата, значительно увеличивая тем самым дозу в глубинном очаге.

Дозные поля таких релятивистских ядер, как неона или аргона, также формируются в заметной мере за счет вторичных частиц, возникающих в процессах фрагментации тяжелых ионов, образующих, однако, нежелательный дозовый вклад за пиком Брэгга.

На рис. 2 ^{1/5/} приведены для сравнения глубинные дозные распределения пучков тяжелых заряженных частиц, гамма-лучей Co-60 и пучка нейтронов с энергией 14 МэВ. Энергетический спектр пучков тяжелых заряженных частиц подобран так, чтобы образовать однородное распределение дозы на глубине от 8 до 12 см в ткани.

Как следует из этого рассмотрения, пучки тяжелых заряженных частиц благодаря только своему преимуществу в геометрических факторах распределения поглощенной дозы позволяют в два-три раза уменьшить лучевую нагрузку на окружающие опухоль нормальные ткани по сравнению с гамма-лучами от Co-60 и, как следствие этого, могут оказаться более эффективными при облучении глубоко залегающих опухолей большого размера, расположенных вблизи жизненно важных органов.

Помимо четко выраженных преимуществ геометрического или, как еще говорят, макроскопического распределения поглощенной дозы тяжелые заряженные частицы характеризуются благоприятными изменениями ряда факторов биологического действия, связанными с высокими значениями линейных передач энергии (ЛПЭ) или особенностями микроскопического распределения поглощенной дозы излучения. Для гамма-лучей и нейтронов только малая часть поглощенной дозы выделяется при значениях ЛПЭ, достигающих 30 кэВ/мкм ^{1/6/}. Для протонов, альфа-частиц и более тяжелых ионов зависимость ЛПЭ от пробега частиц в H₂O показана на рис. 3 ^{1/7/}. У протонов высокоэнергетичный участок спектра ЛПЭ простирается до 100 кэВ/мкм, у ионов гелия - до 250 кэВ/мкм, у ионов неона - до 1500 кэВ/мкм. До 900 кэВ/мкм простирается спектр ЛПЭ у пучка нейтронов ^{1/8/} и в области дозного максимума - у пучка отрицательных пи-мезонов ^{1/9/}.

Пучки тяжелых заряженных частиц в широком интервале высоких значений ЛПЭ характеризуются повышенным значением относительной биологической эффективности (ОБЭ), которое для данного типа радиации определяется как отношение дозы гамма-лучей с энергией 200 кэВ, создающих определенный биологический эффект, к дозе рассматриваемого типа радиации, создающей такой же эффект. Согласно су-



Рис.2. Глубинные дозные распределения пучков тяжелых заряженных частиц, гамма-лучей $\text{Co}-60$ и пучка нейтронов с энергией 14 МэВ /5/.

шестью предположениями радиация с низким значением ЛПЭ, как правило, вызывает гибель клеток в результате накопления сублетальных повреждений, которые в отдельности легко восстанавливаются. Радиация же с высоким значением ЛПЭ убивает клетки в результате одиночных необратимых поражений.

Часто опухоль содержит области с недостатком кислорода, которые менее чувствительны к радиации с низкой ЛПЭ. Мерой этого различия является кислородное отношение (КО), определяемое как отношение дозы, необходимой для создания данного биологического эффекта (например 50%-ный уровень выживаемости) в клетках с недостатком кислорода, к дозе, вызывающей такой же эффект в клетках, насыщенных кислородом.

Для гамма-лучей и электронов КО составляет 2,5–3. Радиация с высоким значением ЛПЭ взаимодействует с насыщенными и лишенными кислорода клетками приблизительно одинаково и КО уменьшается.

На рис.4 представлены экспериментальные данные по зависимости ОБЭ и КО от величины ЛПЭ /10/. В области I значений ЛПЭ от I до 10 кэВ/мкм ОБЭ минимально и близко к I. В области II от 10 до 100 кэВ/мкм ОБЭ, возрастая, достигает максимального значения

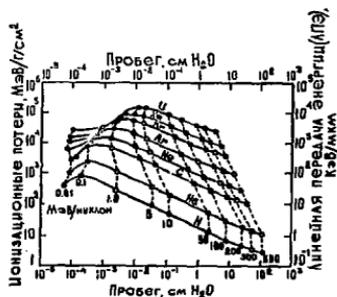


Рис.3. Зависимость ЛПЭ от пробега тяжелых заряженных частиц в H_2O /17/.

и в области III, где ЛПЭ больше 100 кэВ/мкм, ОБЭ снова уменьшается из-за эффектов насыщения. КО максимально в области I, затем плавно уменьшается в области II и достигает минимального значения, равного I, в области III при значениях ЛПЭ около 200 кэВ/мкм. Кроме благоприятного изменения этих двух факторов (увеличения ОБЭ и уменьшения КО) биологическое действие тяжелых заряженных частиц с высокими значениями ЛПЭ характеризуется также меньшей зависимостью от фазы клеточного цикла и режима фракционирования по сравнению с радиацией с низкими значениями ЛПЭ /11,12/.

Можно ожидать, как это было показано в ряде работ /5,13/, что такое различие в факторах биологического действия между радиацией с низкими и высокими значениями ЛПЭ, по крайней мере, в некоторых случаях (например, больших гипоксичных опухолях, резистентных к обычным типам радиации, или медленно растущих опухолях, а также удачного соотношения ОБЭ для опухолевых и прилегающих нормальных тканей) приведет при использовании плотномонизирующей радиации к увеличению поражения в опухоли при сохранении уровня повреждения нормальных тканей внутри опухолевого объема.

Следует отметить, что соотношение между дозой и вероятностью поражения опухоли характеризуется довольно крутой зависимостью - увеличение дозы на 10-20% повышает эффективность излучения с 20 до 80% /14/. При использовании редко ионизирующей радиации терапевтический интервал часто оказывается очень узким, рис.5 /1/. При вероятности излучения опухоли, равной 80%, веро-

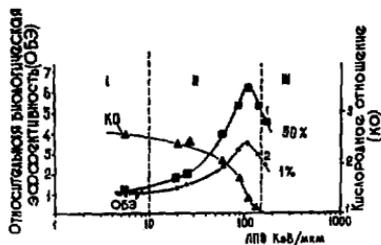


Рис. 4. Экспериментальные данные зависимости ОБЭ и КО от величины ЛПЭ /10/.

ятность осложнения достигает 30%.

Если даже все благоприятные изменения биологических факторов в случае тяжелых заряженных частиц с высокими значениями ЛПЭ только удвоит терапевтическое отношение, то, как это следует из рис.5, при сохранении вероятности излечения опухоли в 80%, вероятность осложнения со стороны нормальных тканей (некроз) может быть практически сведена к нулю¹⁷.

Все рассмотренные выше потенциальные преимущества тяжелых заряженных частиц по сравнению с другими видами радиации, представляющими интерес для лучевой терапии, можно условно изобразить в виде следующей схемы на рис.6¹³, где по горизонтальной оси отложена относительная величина, связанная с преимуществами чисто геометрических факторов дозного распределения, включающих поражение кожи, глубинную дозную зависимость, боковые градиенты дозного поля и дозу за пиком Брэгга. По вертикальной оси отложена относительная величина, связанная с преимуществами факторов биологического действия, обусловленных высокими значениями ЛПЭ.

Это преимущество обосновано пока только в теоретическом плане и радиобиологическими экспериментами, но не в клинических испытаниях, и поэтому помечено на оси ординат знаком вопроса.

Как видно из этого рисунка, все тяжелые заряженные частицы имеют сходные преимущества в чисто геометрических факторах дозного распределения по сравнению с применяемой в настоящее время гамма-радиацией. Быстрые нейтроны не имеют преимуществ в отношении глубинного дозного распределения, но могут оказаться более

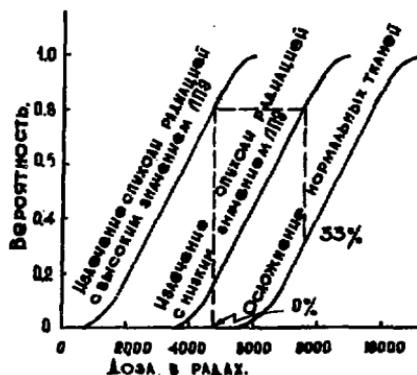


Рис.5. Вероятности излучения опухоли для радиации с низкой и высокой ЛПЭ и вероятность осложнений нормальных тканей в зависимости от дозы радиации ^{1/1}.

эффективными при воздействии на резистентные опухоли из-за благоприятных биологических факторов, обусловленных высокими значениями ЛПЭ. Если ограничиться только геометрическими факторами дозного распределения, то наилучшими для лучевой терапии окажутся протоны и ионы гелия. Если в результате клинических испытаний будет доказано преимущество нейтронов для лечения резистентных опухолей, то отрицательные пи-мезоны и тяжелые ионы, сочетающие в себе благоприятные особенности физических и биологических факторов, окажутся наиболее перспективными для лучевой терапии.

Недавно в ряде работ было показано, что малая добавка (10-20%) радиации с высокими значениями ЛПЭ не пропорционально сильно повышает КО (с 2,5 до 1,8-1,5) ^{15,16,17}. Поэтому применение комбинации двух типов излучений с низкими и высокими значениями ЛПЭ, как например протонных и нейтронных пучков высоких энергий, также может оказаться весьма перспективным.

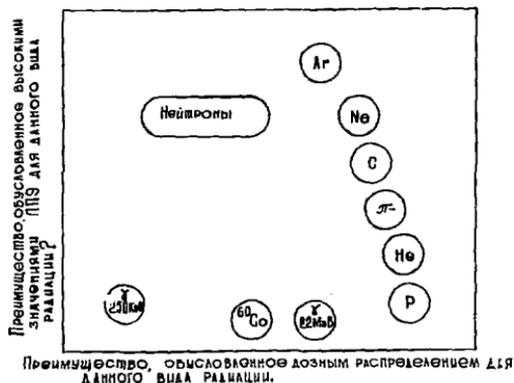


Рис. 6. Схематическое сравнение различных видов радиации, представляющих интерес для лучевой терапии /13/.

3. Первоначальный период радиобиологических исследований и клинических испытаний на пучках тяжелых заряженных частиц

Идея использования тяжелых заряженных частиц в лучевой терапии была высказана Р. Вильсоном еще в 1946 году /19/, однако ее осуществление стало возможным только после появления ускорителей тяжелых заряженных частиц, рассчитанных на энергии в сотни МэВ.

Тосиаки и Лоуренс /20/ первыми в 1952 году использовали пучки протонов, дейтронов и альфа-частиц от синхротрона в Беркли (США) для медико-биологических исследований. Подобные работы на протонах с энергией 187 МэВ начали проводиться в Швеции с 1956 года Ларсоном /21/. Клинические исследования по применению протонов высоких энергий в лучевой терапии ведутся Кальбергом с 1959 года в Гарвардском университете США на синхротроне с энергией 160 МэВ /22/.

Основным направлением этих первых клинических исследований было успешное использование узких пучков заряженных частиц для целей радионейрохирургии — главным образом, для подавления функции гипофиза при лечении гормонозависимых опухолей. За прошедший период времени свыше 1300 больных этого профиля прошло лечение узкими пучками протонов и альфа-частиц /23/.

В то же время единичные попытки применения широких протонных пучков в онкологии для непосредственного облучения опухоли не получили в то время сколько-нибудь заметного развития.

В СССР с самого начала задача была поставлена гораздо шире — создать на действующих советских ускорителях медицинские пучки не только для целей радионейрохирургии, но и для непосредственного облучения опухолей различных локализаций.

Первый в СССР медицинский протонный пучок с необходимыми параметрами был создан по предложению В.П.Джелепова на синхротрон-лотроне Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ, Дубна, в начале 1967 года /24/. Второй медицинский протонный пучок был получен в мае 1967 года на протонном синхротроне Института теоретической и экспериментальной физики (ИТЭФ), Москва /25/. Особенность пучка ИТЭФ является импульсная система вывода, позволявшая разместить короткий "медицинский" цикл ускорения протонов до необходимой энергии 200 МэВ в технической паузе между основными циклами ускорения до 10 ГэВ. Этот режим работы применен в мировой практике впервые.

На каждом из этих пучков были разработаны, спроектированы и изготовлены свои измерительные системы, необходимое оборудование и приспособления для фиксации и ротации больных под протонным пучком, автоматическая и полуавтоматическая аппаратура для управления процессом облучения и наведения "пики Брегга" на очаг поражения, автоматические системы для проведения дозиметрических измерений с использованием ЗЕМ и т.д. /26,27/.

После проведения необходимых физико-технических и радиобиологических исследований на этих пучках специалистами Института экспериментальной и клинической онкологии АМН СССР, теперь Онкологического научного центра АМН СССР (ОНЦ АМН СССР), во главе с А.И.Рудерманом были начаты клинические исследования. С 1967 по 1974 года (т.е. до начала сооружения новых процедурных помещений) на медицинском протонном пучке ИИП ОИЯИ протонная терапия была проведена у 84 пациентов с различными типами злокачественных образований (опухоль пищевода, легкого, гортани, саркома костей и др.) /28/. На медицинском пучке ИТЭФ с 1969 по 1972 год (т.е. до начала реконструкции синхротрона) было облучено в общей сложности 153 пациента с опухолями кожи, женской половой сферы, костей и суставов, а также с целью подавления функции гипофиза /28/. По-

ле реконструкции ускорителя облучение больных возобновилось в 1975 году. Начало облучение пациентов с опухолями глаза. К концу 1977 года полное число пациентов, облученных на медицинском протонном пучке ИТЭФ, составило 258 /29/.

Результаты этого первого этапа клинических исследований подтвердили преимущества протонного облучения у больных с опухолями различной локализации /28/. Как и следовало ожидать, при одинаковых поглощенных дозах и режимах облучения эффект в самой опухоли получается таким же, как и при рентгено- и гамма-терапии. При этом у большинства пациентов удалось избежать осложнений, связанных с облучением соседних с опухолью здоровых органов и тканей /28/.

Третий медицинский протонный пучок в СССР начал функционировать в 1975 году на синхротронном ускорителе в ЛЯФ (Гатчина). К настоящему времени на этом пучке проведены облучения с целью подавления функции гипофиза у 23 пациентов /30/.

С 1974 года в США была развернута программа клинических испытаний облучения опухолей широкими пучками протонов и ионов гелия. 44 пациента с опухолями мягких тканей и костей, дна глаза, прямой кишки, простаты, мочевого пузыря и др. успешно прошли курс протонной терапии на медицинском пучке Гарвардского циклотрона (Бостон, США) /31/. Основной целью этих клинических исследований было улучшение методов укладки и фиксации пациентов и отработка практических приемов точного совмещения облучаемого объема с намеренным для облучения опухолевым объемом в каждом сеансе при фракционированном облучении. Полученные данные позволят выработать критерии точности при планировании протонной терапии и оценить влияние гетерогенности тканей при использовании протонного пучка на результирующее дозное распределение при однопольном и многопольном облучении.

Клинические испытания с целью изучения возможностей применения широких пучков гелия в лучевой терапии онкологических больных начаты на синхротронном ускорителе в Беркли (США) /32/. С 1975 года на пучке ионов гелия с энергией 910 МэВ было облучено 35 пациентов с опухолями мозга, поджелудочной железы, желудка, пищевода и др. Основная задача этого начального этапа клинических испытаний - отработка физико-технических условий облучения и изучение реакций опухолевых и нормальных тканей. Значение ОБЭ для пучка ионов гелия с широким пиком Брегга оказалось близким к 1,25, а КО - к 2,3

/33/. Несколько пациентов было облучено пучком ионов гелия с энергией 740 МэВ на синхротроне в Ньпорт Ньлс (Вирджиния, США) /34/.

Обширные радиобиологические исследования проведены на пучках релятивистских ядер от синхротрона и ускорительного комплекса Бевалак в Беркли (США). Полученные значения ОБЭ и КО для различных ширины пика Брэгга приведены в таблице 3 /33/. По данным другой работы /13/, для ширины пика 10 см КО составляет в центре пика у ионов гелия - 2,6, у ионов углерода - 2,4, у ионов неона - 2,0 и у ионов аргона - 1,7. КО у тяжелых ионов превышает оценки, учитывающие только линейные потери энергии. Причина этого может заключаться в структурных особенностях треков релятивистских ядер, на которые обратил внимание еще Фаулер /35/, а именно - в большом вкладе в общую ионизацию длиннопробежных дельта-электронов, образующих ореол вокруг плотной сердцевины трека и понижающих линейную передачу энергии малым объемам, определяемым размерами отдельных клеток.

Интерес к применению отрицательных пи-мезонов в лучевой терапии возник еще в 1961 году после сообщения Фаулера и Перкинса /36/ и лекции Фаулера, посвященной памяти Резерфорда, в 1964 году /35/. Как уже отмечалось выше (рис.6), пучки отрицательных пи-мезонов сочетают в себе преимущества геометрических факторов дозного распределения и факторов биологического действия, обусловленных высокими значениями ЛПЭ.

Однако продолжительное время пучки отрицательных пи-мезонов с необходимой для лучевой терапии интенсивностью не удавалось получить ни на одном из существующих современных ускорителей вследствие недостаточности токов ускоренных протонов.

В значительной степени эти ограничения впервые в мировой практике удалось преодолеть в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ путем создания широкоугольной фокусирующей магнитной линзы, с помощью которой в 1974 году на существующем выведенном протонном пучке синхротрона 680 МэВ был получен пучок отрицательных пи-мезонов с мощностью дозы (3,5-5 рад/мин), достаточной для проведения радиобиологических и некоторых предклинических исследований /37,38/. В настоящее время на этом пучке проводятся медицинские биологические исследования по определению ОБЭ и КО /38/.

С постепенным вводом в действие мезонных фабрик в Лос-Аламосе (США) /39/, СИНЕ (Швейцария) /40/ и ТРИУМФе (Канада) /41/ с

Таблица 3./33/ Значения ОБЭ и КО для тяжелых ионов с различной шириной пика Брегга.

	Отношение ОБЭ в пике к ОБЭ на плече	КО (в пике)
1. Ионы гелия-4, 230 МэВ/нуклон, пролет 32 см в воде, ширина пика 6 см	1,15	2,3
2. Ионы углерода, 400 МэВ/нуклон, пролет 25 см в воде, ширина пика 4 см	1,6	1,7
3. Ионы неона, 400 МэВ/нуклон, пролет 14 см в воде, ширина пика 4 см	1,35	1,6
4. Ионы аргона, 500 МэВ/нуклон, пролет 12 см в воде, ширина пика 4 см	0,9	-

токама ускоренных протонов от 10 до 100 мкА в этих центрах также были получены интенсивные пучки отрицательных пи-мезонов, на которых начаты широкие радиобиологические и предклинические исследования. В таблице 4 перечислены имеющиеся на сегодняшний день пучки отрицательных пи-мезонов, на которых проводились или которые используются в настоящее время для радиобиологических и предклинических исследований.

В течение последних нескольких лет происходило интенсивное накопление радиобиологических данных на этих пучках, а на мезонной фабрике в Лос-Алamosе проведены первые предклинические исследования на нескольких пациентах /47/.

4. Основные задачи и перспективы лучевой терапии, использующей пучки тяжелых заряженных частиц

Как уже отмечалось выше, пучки тяжелых заряженных частиц по сравнению с гамма-квантами и электронами имеют существенно лучшее дозное распределение, которое допускает гибкое регулирование в соответствии с теми или иными клиническими требованиями или критериями. Для того чтобы в полной мере использовать это важное преимущество пучков тяжелых заряженных частиц в широкой клинической практике, необходима разработка универсальных методов формирования дозных полей, методов точного определения положения опухоли внутри тела пациента, а также адекватных методов контроля за

Таблица 4. Пучки тяжелых ионов, не созданные, но которые создавались или могут создаваться в настоящее время для радиобиологических и медицинских исследований.

№	Ускоритель	Тип ускорен- ных частиц и их энергия (МэВ)	Автоактивность пучка на выходе (мкА)	Числость пуч- ков/мин
1.	Синхротронное ускорение /42/ Бетховен, США	P, 730	I (узкая линия)	~ I
2.	Синхротронное ускорение /43/ ЦЕРН, Швейцария	P, 600	1,7 (узкая линия)	~ 0,06
3.	ИМФОН, Акула /44/	P, 7000	0,06 - 0,15 (узкая линия)	0,5-2,5
4.	МЛУ В /45, 46/ Отвайлер, США	e, 475	~ I (узкая линия)	0,3-1,5
5.	Синхротронное ускорение /36/ ОИЯИ, Дубна, СССР	P, 610	~ 0,1 (узкая линия)	3,5-5
6.	ТРОМ, Вандувер /41/ Кавала	P, 510	~ 10 (узкая линия)	~ 2
7.	ОИИ, Швейцария /40/	P, 590	5 - 15 (узкая линия)	1-4
8.	ЛАНД /13, 39/ Лос-Аламос, США	P, <10	10 - 100 (узкая линия)	5-6

совмещением дозного максимума с опухолью.

Моноэнергетические пучки тяжелых заряженных частиц сравнительно редко используются в клинической практике из-за того, что размер подлежащего поражению очага обычно заметно превосходит ширину пика Брегга. Чтобы увеличить ширину участка с максимальной дозой, облучение проводят монохроматическим пучком со специально подобранным спектром, что эквивалентно наложению нескольких кривых Брегга с разной глубиной расположения пика, рис. 7 /48/. Это достигается с помощью гребенчатых фильтров, когда на пути моноэнергетического пучка тяжелых заряженных частиц устанавливаются профилированные пластины, по-разному замедляющие частицы на отдельных участках поперечного сечения пучка, рис. 8 /49, 50/, или вращающегося модулятора пролета пучка с набором толщин, дискретно меняющих энергию пучка /67/.

Для моноэнергетических пучков тяжелых заряженных частиц, получаемых путем торможения выведенного из ускорителя первичного пучка или образовавшихся в результате взаимодействия первичного пучка с мишенью, необходимое дозное распределение можно сформировать с помощью конной оптики. В одном из этих методов, предложенном и апробированном в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ, из широкого энергетического спектра частиц выделяется только та часть, которая необходима для образования модифицированной кривой Брегга с плоской вершиной и крутым задним фронтом /51/.

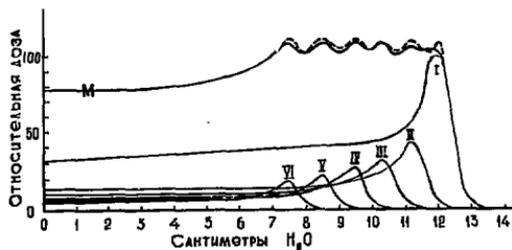


Рис.7. Принцип формирования глубинного дозного распределения с широким максимумом и крутым задним фронтом. Энергия и интенсивность отдельных монохроматических пучков протонов подбирается так, чтобы при смешивании получить модифицированную кривую Брегга с шириной дозного максимума около 5 см ^{48/}.

Формирование дозных плей пучков тяжелых заряженных частиц до последнего времени осуществлялось с помощью разного типа расщепителей, коллиматоров, фильтров, болусов и т.д. Наиболее сложные системы такого рода, имеющиеся в Гарварде и Беркли (США), позволяют формировать однородные дозные распределения диаметром до 30 см ^{52,53/}. Такие системы требуют длительной индивидуальной настройки для каждого пациента.

Сканирование узким пучком по объему опухоли позволяет создать универсальный метод формирования дозных полей. В Упсале (Швеция), ИТЭФ (СССР) ^{54/} и Беркли (США) ^{55/} разрабатываются методы сканирования подвижным пучком по неподвижной мишени. В Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ совместно с ЦКБ АМН СССР разрабатывается устройство, позволяющее осуществить ротационное сканирующее облучение на неподвижном пучке опухолей сложной формы с автоматическим совмещением дозного максимума с очагом поражения и автоматическим регулированием ширины дозного максимума в соответствии с размерами опухоли ^{56/}. В Стэнфорде (США) намечается применить облучение отрицательными пи-мезонами сразу с 60 направлений с помощью сверхпроводящей магнитной тороидальной линзы ^{45, 46/}, рис.9. Каждое из этих направлений по мере изменения энергии пи-мезонов может включаться по заданной программе от ЭМ, что

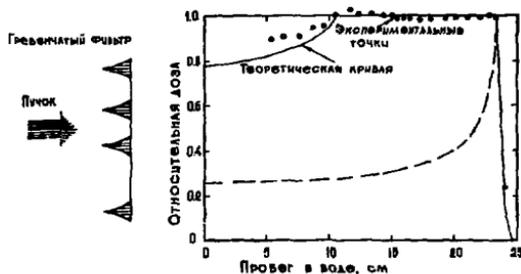


Рис.8. Получение модифицированной кривой Брегга с помощью гребенчатого фильтра /49/.

обеспечивает наиболее совершенный вид сканирования опухолей сложной формы при горизонтальном расположении пациента. Такая же сверхпроводящая тороидальная линза в настоящее время создается и в СИНе (Швейцария) /57/.

Возможности формирования с помощью тяжелых заряженных частиц дозных полей практически любой пространственной конфигурации могут оказаться полезными только в случае достаточно полного и точного определения формы и размеров опухоли, а также места ее расположения внутри тела пациента.

Обычные методы точеческой рентгенодиагностики не позволяют получить точности, необходимые для терапии тяжелыми заряженными частицами /58/. Важным шагом в этом направлении явилось создание методов аксиальной рентгеновской томографии с применением ЭМ /59/. Принцип действия такой установки показан на рис.10 /60/.

Голова пациента последовательно сканируется узким пучком рентгеновских лучей. Затем происходит поворот всей системы на определенный угол, и операция сканирования повторяется. Сигналы детектора, содержащие информацию о величине ослабления потока рентгеновских лучей для каждого направления просвечивания, поступают в ЭМ, которая по заданной программе вычисляет распределение плотности облучаемого объекта в плоскости сканирования рентгеновских лучей.

Современные рентгеновские томографические аппараты обладают пространственным разрешением до 2 мм /61/ и позволяют обнаружить разницу в плотности мягких тканей 1-3% при дозе облучения пациен-

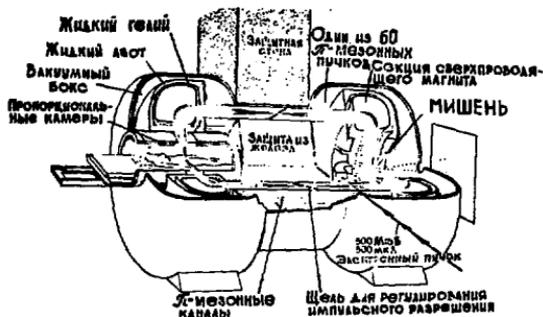


Рис. 9. Сверхпроводящая магнитная тороидальная линза для облучения отрицательными пи-мезонами с 60 направлений, Стэнфорд, США /45/ (Проект).

та около 1 рад /62/.

Методы протонной и ионной томографии /63, 64/, в которых вместо узкого пучка рентгеновских лучей используются монохроматические пучки тяжелых заряженных частиц, характеризуемых жесткой связью между пробегом и энергией, могут обеспечить такие же точности при дозе в 10-15 раз меньшей или увеличить при одинаковой дозе точность в 3-4 раза по сравнению с рентгеновской томографией /65/.

Кроме того, при использовании методов протонной и ионной томографии все гетерогенности и изменения толщины тканей для любого направления пучка тяжелых заряженных частиц могут быть точно определены в единицах пробега самих этих частиц (минуя сложные вычисления, имеющие место в случае рентгеновских томограмм). Полученные данные позволяют затем составить индивидуальные программы для многопольного, ротационного или сканирующего облучения соответствующего пациента на пучке таких частиц.

Пример экспериментальной установки для поперечной аксиальной томографии альфа-частицами, разработанной в Беркли (США), показан на рис. II /66/. На рис. I2 /66/ приведены для сравнения томографические изображения головы человека, полученные с помощью рентгеновских лучей на аппарате EMI-скеннер и альфа-частиц на установке, изображенной на рис. II.

Точное совмещение в процессе облучения сформированного дозного распределения с опухолевым объемом является очень сложной и

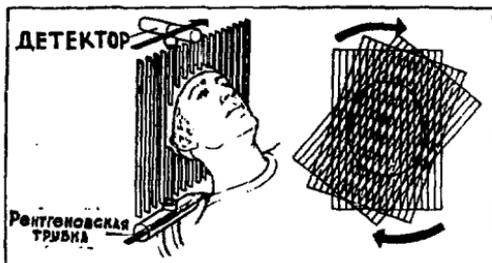


Рис.10. Принцип действия установки для аксиальной рентгеновской томографии с применением ЗЕМ /60/.

до конца не решенной задачей. Первый шаг в этом направлении был сделан в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ при облучении опухолей пищевода. В этом случае в просвет пищевода вводился миниатюрный полупроводниковый датчик, сигнал с которого использовался в системе обратной связи для автоматического регулирования энергии протонного пучка и компенсации всех изменений гетерогенности и глубины залегания опухоли при каждом малом изменении положения объекта облучения во время его вращения /38/.

В последнее время предложено несколько методов, позволяющих определить положение дозного максимума в теле пациента по вторичному излучению от пучка тяжелых заряженных частиц при помощи датчиков, расположенных вне тела пациента. Некоторые из этих методов основаны на использовании мгновенных гамма-лучей, образующихся как при захвате отрицательных пи-мезонов ядрами среды, так и от распада нейтральных пи-мезонов, возникающих от перезарядки отрицательных пи-мезонов на ядрах водорода, содержащихся в ткани /68/. В других методах предлагается использовать наведенную активность, возникающую при взаимодействии пучка тяжелых заряженных частиц с ядрами атомов, составляющих ткань /69/, рис.13, или явление "автоактивации" пучка тяжелых ионов, основанное на пре-

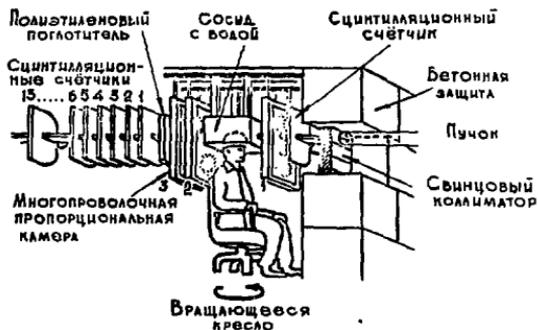


Рис. II. Схема экспериментальной установки для аксиальной томографии на пучке альфа-частиц от синхротрона в Беркли, США /66/.

вращения в результате ядерных взаимодействий некоторой доли частиц пучка в поток радиоактивных ядер ¹⁷⁰, рис. I4.

Точность совмещения дозного максимума с опухолью в процессе облучения зависит также и от ряда клинических факторов и прежде всего от того, с какой точностью задается подлежащий облучению минимальный объем, состоящий из самой опухоли и окружающих тканей, облучаемых для создания запаса, необходимого для поражения всех злокачественных клеток. Помимо этого следует учитывать такие факторы как неопределенность при укладке пациента на пучке от сеанса к сеансу, степень его неподвижности во время облучения, изменение формы и положения внутренних органов и т.д. ¹⁵⁸. Решение всех этих задач требует накопления и обобщения клинических данных, разработки методов жесткой фиксации пациентов, создания прецизионных систем рентгеновской и оптической центрации пациента, обеспечивающих контроль за его положением в процессе укладки и облучения.

Окончательное статистически обоснованное заключение о практической ценности пучков тяжелых заряженных частиц и их терапевтических преимуществах по сравнению с электронно-фотонным излучением может быть получено только в результате широких рандоми-



Рис. 12. Томографические изображения головы человека, полученные с помощью рентгеновских лучей на аппарате ЕМІ и с помощью альфа-частиц на установке, изображенной на рис. II ^{766/}.

зированных клинических испытаний на группах пациентов численностью в несколько сот человек по каждой локализации ^{771/}.

Наиболее определенные перспективы в этом отношении имеются для протонного излучения. Протоны по своему биологическому действию почти полностью эквивалентны гамма-лучам и электронам. Это в значительной степени суживает диапазон необходимых предклинических исследований для протонных пучков и позволяет непосредственно использовать накопленный в гамма-терапии клинический опыт в отношении оптимального режима фракционирования и применения модифицирующих факторов лучевого воздействия ^{718/}. Кроме того, получение протонных пучков с энергией около 200 МэВ обходится существенно дешевле, чем получение пучков других тяжелых заряженных частиц.

В настоящее время в ряде научных центров ведется интенсивная подготовка к проведению крупномасштабных клинических испытаний. В Уппсала (Швеция) разработан проект многокабинного комплекса, оснащенного специальным ускорителем на энергии протонов до 200 МэВ ^{718/}. В проекте этого комплекса предусмотрена также возможность ускорения дейтронов с энергией ~ 100 МэВ для получе-

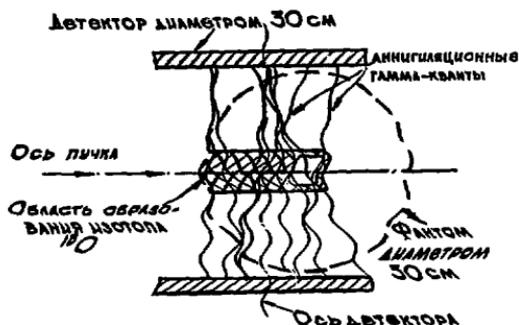


Рис. 13. Схема экспериментальной установки для определения положения протонного пучка по наведенной активности ^{15}O /69/.

ния терапевтического пучка быстрых нейтронов и осуществления комбинированного протонного и нейтронного облучений. Предполагается, что такой многокабинный комплекс может обеспечить проведение до 200 облучений в день. Это полностью удовлетворит потребности в лучевом лечении всех онкологических больных, которым показана протонная терапия, для такой страны, как Швеция, с населением численностью около 8 млн. человек. Приблизительная стоимость комплекса - 7 млн. долларов /79/.

Начато сооружение трехкабинного медико-биологического комплекса на протонном синхротроне ИТЭФ /72/, который является прототипом будущего многокабинного комплекса с собственным ускорителем, намеченного к размещению на территории, прилегающей к Онкологическому научному центру АМН СССР /73/. В проекте этого комплекса, разрабатываемом совместно ИТЭФ ГКАЗ, ОИЦ АМН СССР и НИИЭФА им. Ефремова, предусматривается сооружение 8 каналов внешнего пучка, 7 из которых предназначены для лучевой терапии, протоннографии и радиобиологических исследований. Эти пучки выводятся в 5 процедурных помещений горизонтально, вертикально и под углом 45° . Наличие пяти процедурных кабин позволит проводить до 100 лучевых сеансов в день. Восьмой канал предполагается использовать для на-

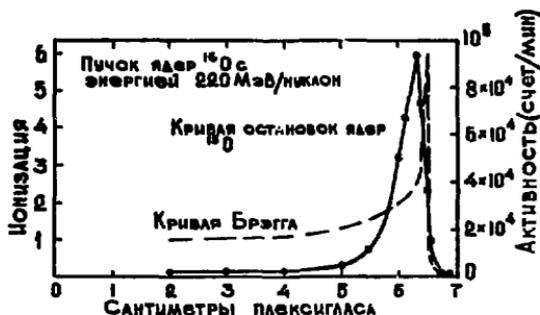


Рис.14. Распределение остановок ядер ^{15}O в плексигласовом подложителе при прохождении пучка релятивистских ядер ^{16}O с энергией 220 МэВ/нуклон ^{73/}.

работки короткоживущих радионуклидов, таких как O^{15} , N^{13} , C^{11} , I^{123} . По предварительным оценкам общая стоимость комплекса составит около 25 млн. рублей ^{73/}.

В Лаборатории ядерных проблем ОЯЯИ на базе реконструируемого ускорителя создается медико-биологический комплекс с двумя кабинками для протонной терапии и одной кабиной для пи-мезонной терапии ^{56/}. Кроме того, в этом комплексе предусматривается получение терапевтического нейтронного пучка с энергией в сотни МэВ для использования, в основном, в комбинации с протонным облучением. Предусматривается также специализированный пучок протонов с энергией до 260 МэВ для проведения диагностических процедур на основе методов протонной радиографии и томографии. Станет возможной разработка короткоживущих радионуклидов для радионуклидной диагностики ^{74/}.

Расширяются клинические испытания в Гарварде (США), где в настоящее время к ускорителю пристраивается второе процедурное помещение для протонной терапии ^{75/}. Имеется проект сооружения специализированного ускорителя для протонной и пи-мезонной терапии в Гейдельберге (ФГ) ^{76/}. Терапия отрицательными пи-мезонами планируется на мезонных фабриках в ЦИЕ (Швейцария), ТРИМме

(Канада), где в настоящее время заканчиваются подготовительные работы /40, 41/. На мезонной фабрике в Лос-Аламосе уже проведены первые предклинические исследования на пациентах с целью определения ОБЭ пи-мезонов на коже человека /47/.

В Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ клинические испытания на пучке отрицательных пи-мезонов станут возможны после завершения реконструкции синхротроциклотрона в сильноточный фазотрон /38, 56/.

Подготовка к лучевой терапии тяжелыми ионами интенсивно ведется в Беркли (США) на ускорительном комплексе БЕВАЛАК, где уже осуществлен вывод ускоренных релятивистских ядер С, N, O, Ne и Ar в два процедурных помещения /33/. Клинические испытания ионами гелия начаты в Боркли /32/ и Дьюпорт Ньюс (США) /34/, а также планируется в ОРСе (Франция) /77/. Рассматриваются возможности для лучевой терапии многозарядными ионами на ускорительном комплексе Лаборатории высоких энергий ОИЯИ /78/.

5. Заключение

Пучки тяжелых заряженных частиц обладают большими потенциальными преимуществами для повышения эффективности лучевой терапии. Это обусловлено как преимуществами геометрических факторов дозного распределения, так и благоприятными факторами биологического действия пучков таких частиц. Лучевая терапия пучками тяжелых заряженных частиц успешно прошла период первоначальных клинических испытаний. Наибольший опыт терапевтического применения узких протонных пучков при облучении гипофиза накоплен в США. Наибольший опыт облучения злокачественных опухолей широкими протонными пучками накоплен в СССР. Для использования в полной мере потенциальных преимуществ пучков тяжелых заряженных частиц в широкой клинической практике необходимо разработать универсальные методы формирования дозных полей, повысить точность методов топоческой диагностики опухолей, а также разработать адекватные методы контроля за совмещением дозного максимума с опухолевым объемом. Накопленный опыт позволяет определить пути решения этих основных задач и перейти к широким клиническим испытаниям.

Проведение таких широких клинических испытаний можно осуществить на уже действующих или реконструируемых ускорителях путем сооружения примыкающих к ним медико-биологических павильонов с несколькими процедурными помещениями. Однако наиболее полно и эф-

эффективно клинические испытания и массовое лечение больных можно осуществить лишь на специально создаваемых многокабинных медико-биологических комплексах с собственными ускорителями.

Выполнение программы широких клинических испытаний позволит получить практические рекомендации для использования пучков тяжелых заряженных частиц в лучевой терапии онкологических больных. Внедрение в медицину этих новых видов излучений является важным шагом на пути использования достижений ядерной физики и ускорительной техники на благо человека.

В заключение автор считает своим приятным долгом поблагодарить профессора А.И.Рудермана, совместная работа с которым определила тематическую направленность этой статьи, а также члена-корреспондента АН СССР В.П.Джелепова и профессора Л.Л.Гольдина; прочитавших работу в рукописи и сделавших ряд важных замечаний.

Литература

1. Heusinkveld R.S. et al. IEEE Trans. on Nucl. Sci. NS-22, No. 3, p.1211 (1975).
2. Tsien K.C. and Robbins R. Radiology 70, p.486 (1958).
3. Purdy J.A. Radiation Oncology Annual Report (1973-74), p.176, Washington University, St. Louis.
4. Boone M. et al. IEEE Trans. on Nucl. Sci. NS-18, No. 3, p.36 (1971).
5. Raju M.R. Informal Report LA-5041-MS. Los-Alamos, Scien. Lab. (1972).
6. Linear Energy Transfer, ICRU Report 16, ICRU, Washington, 1970.
7. Steward P.G. Lawrence Radiation Laboratory, Report UCRL-17314 (1967).
8. Amols H.I. et al. Radiology 116, p.183 (1975).
9. Bewley D.K. Radiation Research 34, p.437 (1968).
10. Barendsen G.W. In Proc. of the planning meeting on Biomedical Application of the Pion Beam from the 590 MeV Isochronous cyclotron. Zurich. Switzerland, May 1971, p. 73.
11. Sinclair W.K. Brookhaven National Lab. report BNL-50203 (C-57), (1969).
12. Barendsen G.W. Current Topics in Radiation Research 4 (Ebert M. and Howard A., Eds.) North-Holland Amsterdam, p.295-354 (1968).

13. Raju M.R. and Phillips T.L. Informal Report LA-6588-MS. Los-Alamos, Scien.Lab. (1977).
14. Shukovsky L.J. and Fletcher G.H. Radiology, 104, 629 (1972).
15. Raju M.R. et al. Radiology 102, 425 (1972).
16. Raju M.R. and Jett J.H. Radiation Research 60, 473 (1974).
17. Todd F.W. et al. Cancer 34, 1 (1974).
18. Graffman S. and Larsson B. High-Energy protons for Radiotherapy. In: Proc.of an Int.Workshop, Key Biscayne Florida (Oct.1-3, 1975) p.506.
19. Wilson R.R. Radiology 47, 487 (1946).
20. Tobias C.A. et al. Am.J.Roentgenol 67, 1 (1952).
21. Larsson B. The British J.of Radiology 34, 143 (1961).
22. Kiellberg R.N. and Preston W.H. Excerpta med.Int.Cong.series No. 36 (1961).
23. Suit H.D. et al. Current Status of Proton Therapy in North America. In Proc.of an Int.Workshop, Key Biscayne Florida (Oct.1-3, 1975) p.530.
24. Джелепов В.П. и др. Препринт ОИЛИ 16-3491, Дубна (1967). Мед.радиология, № 4, 54 (1969).
25. Хорошков В.С. и др. Мед.радиология № 4, 58 (1969).
26. Авазов V.M. et al. Сообщение ОИЛИ Р-5854, Дубна, 1971.
27. Джелепов В.П. и др. Применение протонных пучков в СССР для медико-биологических целей. В трудах 4-ой межд.конф. ООН по использованию атомной энергии в мирных целях. Женева, Швейцария, 6-16 сентября, 1971.
Peaceful Uses of Atomic Energy. v.13, p.147 (1972).
28. Протонные пучки высоких энергий и лучевая терапия злокачественных опухолей. Под ред. В.П.Джелепова и А.И.Гудермана, ОИЛИ 9035, Дубна (1975).
29. Гудерман А.И. В сб.: Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии. Часть 2, стр.5, ИТЭФ, Москва (1977).
30. Кошкин Б.А. и др. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии. стр.23 и 34, ИТЭФ, Москва (1977).
31. Suit H. et al. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии. стр.17, ИТЭФ, Москва (1977).
32. Castro J.R. et al. В сб. Первый международный семинар по ис-

- пользованию протонных пучков в лучевой терапии, стр.18, ИТЭФ, Москва (1977).
33. Castro J.R. et al. Heavy-Ion Therapy In: LBL-5610, Berkeley p.198 (1977).
 34. D'Angio C.J. et al. Cancer 34, 6 (1974).
 35. Fowler P.H. Proc. nu.Soc. 85, 1051 (1965).
 36. Fowler P.H. and Perkins D.H. Nature 189, 524 (1961).
 37. Абазов В.И. и др. Сообщение ОИЯИ Р13-8079, Дубна, (1974).
Джеленов В.П. и др. Мед.радиология, № 7, 3 (1975).
 38. Абазов В.И. и др. Сообщение ОИЯИ Д-8883, Дубна (1975).
 39. Richman C. Radiation Research 66, 453 (1976).
 40. Dertinger H. et al. In: J.Radiat.Biol. 29, No.3, 271 (1976).
 41. Henkelman R.M. et al. TRI-PP-76-6, Vancouver, B.C.,Canada (1976).
 42. Raju M.R. et al. British.J.of Radiology 45, 178 (1972).
 43. Baarli J. Radiation Research Supplement 7, 10 (1967).
 44. Mill A.J. et al. British J.of Radiology 49, 166 (1976).
 45. Boyd D. et al. Nuclear Instr.&Meth. 111, 315 (1973).
 46. Pistenna D.A. et al. Treatment planning for negative pi-meson radiation therapy: Simultaneous multipart irradiation with Stanford Medical Pion Generator. In:Proc.of the Int.Conf.on Particles and Radiation Therapy, LBL, Berkeley,California (Sept.14-17, 1976).
 47. Kligerman M.M. Amer.J.Roentgenol.126, 261 (1976).
 48. Robertson J.B. et al. Cancer 35, 1664 (1975).
 49. Karlsson B.G. Strahlentherapie 124, 481 (1964).
 50. Блохин С.И. и др. Мед.радиология, 15, (5), 64 (1970).
 51. Зорин В.П. и др. Препринт ОИЯИ Р16-11080, Дубна (1977).
 52. Suit H. et al. Cancer 35, 1646 (1975).
 53. Crowe K. et al. Lawrence Berkeley Lab.Report LBL-4235 (1975).
 54. Блохин С.И. и др. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии, стр.25, ИТЭФ, Москва (1977).
 55. Leemann C. et al. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии, стр.9, ИТЭФ, Москва (1977).
 56. Джеленов В.П. и др. Препринт ОИЯИ Р16-11183, Дубна (1978).
 57. CERN COURIER vol.17, No.9, p.285, sept. (1977).
 58. Coitein M. and Stut H. The Influence of Tissue Inhomogeneities on the Dose Distribution of Charged Particle Beams. In: Proc. of an Int.Workshop, Key Biscayne Florida (Oct.1-3,1975)p.138.

59. Housfield G.N. British J. of Radiology 46, 1016 (1973).
60. Hospital Practice. USA, February (1975) p.55.
61. Swindell W. and Barrett H.H. Physics Today 30, No.12,32(1977).
62. Omega A.K. et al. British J. of Radiology 42, 604 (1976).
63. Tobias C.A. et al. Heavy Ion Radiography and Microscopy. UCRL-17357 (1967).
64. Koehler A.M. Science 160, p.303 (1968).
65. Hanson K.M. et al. LA-UR-77-2385 Los-Alamos (1977).
66. Tobias C.A. et al. Heavy Ion Radiography. In LBL-5610, Berkeley p.164 (1977).
67. Koehler A.M. et al. Nucl. Instr. & Meth. 131, 437 (1975).
68. Sperinde J. et al. Nucl. Instr. & Meth. 97, 331 (1971).
69. Bennett G.W. et al. Nucl. Instr. & Meth. 125, 333 (1975).
70. Tobias C.A. Radiology 108, 145 (1973).
71. Graffman S. and Jung B. Clinical Trials in Radiotherapy and the Merits of High Energy Protons. Acta Radiol. (Ther) 2, No.1 (1970).
72. Чувило И.В. и др. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии, стр.22, ИТЭФ, Москва (1977).
73. Чувило И.В. и др. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии, стр.39, ИТЭФ, Москва (1977).
74. Джеленов В.П. и др. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии, стр.32, ИТЭФ, Москва (1977).
75. Koehler A.M. et al. В сб. Первый международный семинар по использованию протонных пучков в лучевой терапии, стр.10, ИТЭФ, Москва (1977).
76. Strahlentherapie und Diagnostik mit Ionen und π^- -Mesonen. Eine Profektstudie im Auftrag des BMBF. Heidelberg (1977).
77. Malaise F.P. and Gauchard M. In: Proc. of an Int. Workshop, Key Biscayne, Florida (Oct.1-3,1975) p.385.
78. Любимов А.Л. и др. О возможности использования ускорительно-го комплекса Лаборатории высоких энергий ОИЯИ для лучевой терапии многозарядными ионами. В Тезисах докладов Всесоюзного научно-технического семинара (II Всесоюзного симпозиума) "Проблемы развития терапевтической радиационной техники" М., (1975), стр. II4.
79. Graffman S. et al. Amer. Inst. of Phys. Conf. Proc. No. 9, Cyclotrons, 603 (1972).

ПРИМЕНЕНИЕ АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ
МИКРОЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА НОРМАЛЬНЫХ И ОПУХОЛЕВЫХ
НУКЛЕИНОВЫХ КИСЛОТ И ЕГО КОРРЕЛЯЦИЯ С МИКРОЭЛЕ-
МЕНТНЫМ СОСТАВОМ КЛЕТОЧНЫХ КОМПОНЕНТОВ И ЦЕЛЬНЫХ
ТКАНЕЙ

Э.Л.Андроникашвили

Институт физики Академии наук Грузинской ССР, Тбилиси

I. Введение

Нейтронно-активационный анализ (НАА) как средство изучения злокачественных новообразований имеет самый широкий спектр применений. С его помощью можно обнаружить нарушения микроэлементного метаболизма в самых различных органах животных с локальными опухолями.

НАА дает нам сведения о содержании микроэлементов непосредственно в опухолевых тканях, причем различные формы заболевания заметно отличаются друг от друга по содержанию тех или иных микроэлементов.

Этот же метод позволяет исследовать микроэлементы на уровне клетки и изменении их распределения между субклеточными оргanelлами, происходящее в результате воздействия на опухоль рентгено- или химиотерапевтическими средствами.

Особенно эффективен метод НАА при изучении содержания ионов тяжелых металлов в составе нуклеиновых кислот (ДНК, РНК) и белков, включая ядерные белки-гистоны.

При сдвигах микроэлементного состава у животных - опухоленосителей особая роль принадлежит цинку. Однако не надо думать,

что цинк является металлом-канцерогеном. Наоборот, такие металлы, как цинк, магний, кальций, натрий, калий, железо, играющие наибольшую роль в жизни любого организма, не могут быть канцерогенными по существу, ибо их канцерогенность обозначала бы, что естественным состоянием любого организма было бы заболевание раком, саркомой или лейкемией.

Согласно Лосбу и др.^{/1/} канцерогенными (я мутагенными) металлами, как видно из таблицы I, являются ртуть, кобальт, кадмий, медь, сурьма, марганец и др. Эти же элементы вносят нарушения в точность синтеза нуклеиновых кислот. Но изменение их концентрации на различных уровнях от органа до макромолекулы при злокачественном росте относительно мало по сравнению с изменениями концентрации цинка, железа и других неканцерогенных металлов.

Особая роль цинка в развитии опухолевого роста объясняется тем, что он входит в активные центры ферментов, ведающих репликацией ДНК^{/2/}, формированием РНК на матрице ДНК^{/3/} и формированием ДНК на матрице РНК^{/4/} - процесс (обратной транскрипции), сопровождающий попадание РНК-ового вируса (онкорнавируса) в клетку хозяина. Известно, что эти ферменты, а именно: ДНК-полимераза, РНК-полимераза и обратная транскриптаза, будучи лишены цинка, в значительной степени теряют свою ферментативскую активность.

Кроме железа и, особенно, цинка, входящих в нормальные и опухолевые нуклеиновые кислоты в преобладающе больших количествах, необходимо исследовать и такие элементы, как кальций и, особенно, магний, также играющие большую роль в процессах биосинтеза. Однако оба эти элемента мы исследовали атомно-абсорбционным методом.

Таблица I. Тест оценки мутагенности и/или канцерогенности

In vitro проба

Матрица: поли [d(A-T)]

Правильный субстрат: dATP + [α - 32 P]dTPP

Неправильный субстрат: [3 H]dGTP

ДНК-полимераза

Mg $^{2+}$

Известные канцерогены и/или мутагены	+ экзогенные агенты (катионы металлов)	
	Увеличение ошибок включений	Отсутствие ошибок включения
Серебро	Серебро	Алюминий
Бериллий	Бериллий	Барий
Кадмий	Кадмий	Кальций
Кобальт	Кобальт	Железо
Хром	Хром	Калий
Медь	Медь	Рубидий
Марганец	Марганец	Магний
Никель	Никель	Натрий
Свинец	Свинец	Стронций
Мышьяк ^{x)}		Цинк
Селен ^{x)}		

x) Не исследовались

(по Лоев'у и др., 1977).

После этого вступления перейдем к описанию конкретных опытов.

2. Микроэлементы в органах больного животного

Рассмотрим вопрос о том, как влияет наличие локальной опухоли, привитой в область бока экспериментальным животным (крысы), на содержание цинка в различных органах. Из рис. I, взятого из статьи Э.Л.Андроникашвили, Л.М.Мосулишвили и др.^{/6/}, мы видим, что наибольшая концентрация этого металла в опухолевой ткани связана с саркомой M-I (перевиваемая опухоль, впервые индуцированная Шабодом и Блох с помощью 3,4-бензпирена). В мышечной ткани некоторые виды сарком: M-I, лимфосаркома Плисса (возникающая у крыс, в рационе которых содержится 3,3-дихлорбензидин) тоже увеличивают содержание цинка. Исключение составляет карцино саркома Уокер-256 (спонтанная опухоль молочной железы), которая, по-видимому, понижает содержание цинка в мышце. Особо сильные изменения содержания цинка проявляются в костной ткани и в печени.

На рис. I заштрихованная часть представляет собой стандартную ошибку. Кроме того, на нем указаны 95% доверительные интервалы.

Особенно подробно было изучено нами^{/7/} перераспределение различных химических элементов в "здоровых" тканях крыс-опухоленосителей, таких как кость, печень и мышцы для случая саркомы M-I, привитой белым беспородным крысам в области бока. Данные приведены на 14 день после прививки (см. таблицу II).

Таким образом, данные НАА могут быть использованы при определении характера заболевания.

Естественно, что если возможно обнаружить нарушение микроэлементного метаболизма методом НАА в отдельных органах, то он

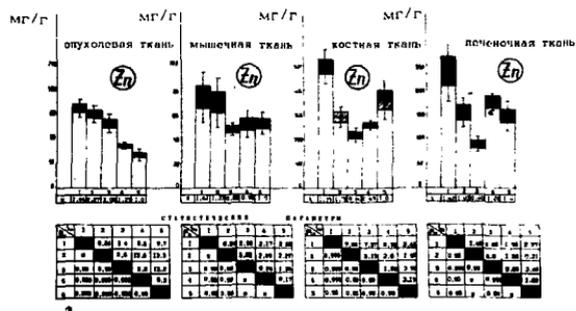


Рис. 1. УРОВЕНЬ СОДЕРЖАНИЯ ЦИНКА В ОПУХОЛЕВЫХ, МЫШЕЧНЫХ, КОСТНЫХ И ПЕЧЕНОЧНЫХ ТКАНЯХ КРЫС: 1. САРКОМА М-I; 2. ЛИМФОСАРКОМА ПЛИУССА; 3. КАРЦИНОСАРКОМА УОКЕР-256; 4. САРКОМА С-45; 5. НОРМА (ЗДОРОВЫЕ КРЫСЫ)

■ - СТАНДАРТНАЯ ОШИБКА $\sqrt{\frac{\sum(x-\bar{x})^2}{n(n-1)}}$; ■ - 95%-НЫЙ ДВУСТОРОННИЙ ДОВЕРИТЕЛЬНЫЙ ИНТЕРВАЛ;

$$K = \frac{\text{КОНЦ. ЭЛЕМЕНТА В ТКАНИ ОПУХОЛЕВЫХ КРЫС}}{\text{КОНЦ. ЭЛЕМЕНТА В ТКАНИ ЗДОРОВЫХ КРЫС}}$$

ТАБЛИЦА II. Содержание некоторых микроэлементов в цельных тканях нормальных и опухолевых (саркома М-1) крыс (14-й день после прививки).

Исследуемый объект	Содержание элементов в мкг/г сухого препарата						
	Zn	Co	Fe	Rb	Sb	Cr	Se
<u>Саркома М-1</u>							
Печень	237±30	0,24±0,13I	709±65	38±4	0,27±0,05	11±2,2	1,9±0,2
Мышцы	74±9	0,17±0,058	160±49	27±1,8	0,30±0,063	4,1±1,2	0,91±0,076
Кости	493±32	0,18±0,037	403±63	I	0,25±0,042	0,5	0,1
<u>Норма</u>							
Печень	146±13	0,058±0,006	509±52	29±2,4	0,01±0,009	1,7±0,31	0,9±0,11
Мышцы	52±4	0,053±0,0187	154±49	21±2,8	0,012±0,0021	3,4±1,1	0,50±0,06
Кости	362±38	0,046±0,0013	54±9	3,5±0,73	0,012±0,0022	1,2±0,44	0,7±0,2

тем более должен позволить определять изменение количества микроэлементов в органе, в котором локализована опухоль. При этом особую роль в случае саркомы М-1 играют цинк и железо, которые в относительно сильной степени мобилизуются из других "здоровых" органов животного опухоленосителя для того, чтобы принять активное участие в развитии опухоли. По поводу влияния цинка на развитие опухоли имеется богатая литература^{/8,9,10,11/}. Особая роль цинка была установлена Петерингом с сотрудниками^{/8/} и Макквити с соавторами^{/9/} в опытах на животных. В этих экспериментах показано, что скорость роста опухоли карциносаркомы Уокер-256, в значительной степени зависит от содержания цинка в диете. Было показано, что цинкдефицитная диета приводит к уменьшению скорости роста опухоли, а увеличение времени жизни крыс-опухоленосителей после прививки достигает 70% и более.

Своеобразным отражением процессов злокачественного роста может быть цельная кровь живого организма. Имеются попытки определения связи между уровнем содержания микроэлементов в крови и различными стадиями роста злокачественных опухолей^{/12-13/}.

Интересные с этой точки зрения результаты были получены авторским коллективом Хргович и др.^{/14-15/} при исследовании содержания меди в сыворотке крови при болезни Ходжкина. На большем клиническом материале ими было показано, что повышение концентрации сывороточной меди значительно опережает проявление рецидивов. В нашем коллективе (Кикинадзе и др.) была выполнена исследовательская работа по изучению содержания микроэлементов в крови и лимфоцитах больным острым лимфо- и миелобластозом. Было показано, что между содержанием цинка, количеством лимфоцитов и появлением бластных клеток в периферической крови имеется строгая корреляция, и, как правило, повышение содержания

цинка служит показателем наступления рецидивов. Подтверждением этому служат таблица III и рисунок 2, в которых представлены отдельные примеры из цикла проведенных нами исследований.

3. Изменение концентрации микроэлементов под влиянием рентгенотерапии

Наши ранние, проведенные еще в 1968 году эксперименты^{/16/}, в которых наблюдалось увеличение концентрации некоторых микроэлементов при злокачественном росте на уровне нуклеиновых кислот ДНК и РНК, послужили основанием для того, чтобы высказать мысль о том, что терапевтическое действие различных агентов должно приводить к снижению концентрации тех микроэлементов, которые активно влияют на рост опухоли. Согласно этой идее, ионизирующее излучение создает в биологических системах активные радикалы, которые вступают в конкурентную борьбу за обладание металлами, входящими в состав ядерных белков и нуклеиновых кислот, переводя их в растворимое состояние и выводя их за пределы клеточного ядра^{/17/}. Тем самым они понижают биологическую активность клетки.

Для выяснения этого вопроса нами были проведены две серии исследований. В первой серии совместно с Институтом медицинской радиологии^{/18/} были проведены опыты, в которых костная опухоль Кинга подвергалась гамма-терапии. В результате лечения в костной ткани происходило снижение цинка, как это показано на рис. 3.

В другом случае опыты (Мосулишвили, Ткешелашвили, Матевосян) проводились на животных (крысы с привитой саркомой М-1).

Исследовались субклеточные компоненты - ядра, митохондрии, микросомы, выделенные из саркомы М-1 после локального облучения рентгеновскими лучами саркоматозных крыс. Опыты проводились в процессе роста опухоли^{/19/}. Было показано, что цинк действительно "вымывается" из клеточного ядра, однако он не уходит из клет-

ТАБЛИЦА III. Клинико-гематологические характеристики острого лимфобластного лейкоза

Пациенты	Лейкоциты в мм ³	Лимфоциты в %	Бластные клетки в %	Содержание в цельной крови (мкг/г)		Примечание
				Zn	Fe	
Доноры	6000-8000	25-30	нет	27±2,7	2367±88	
№ 1287	I 4750	53	8	59	1177	Ремиссия не наблюдалась
	II 2600	25	2	34	2552	
№ 535	I 208 000	85	8,5	51	1641	Клиническая ремиссия
	II 8000	83	нет	30	2020	
№ 543	I 2400	66	17	47	2318	Ухудшение состояния
	II 13 000	37	21	58	2049	
№ 1338	I 2700	73	4	39	1644	Клинико-гематологи- ческая ремиссия
	II 7000	20	нет	29	2185	

I - до лечения

II - после лечения

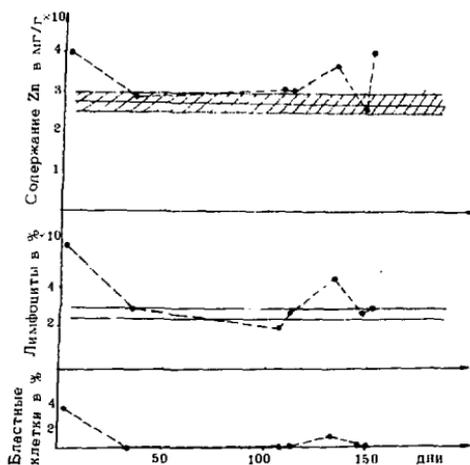


Рис. 2. Наличие корреляции между содержанием цинка и крови, количеством лимфоцитов и бластных клеток в динамике развития острого лейкоза.

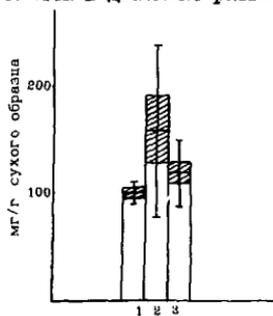


Рис. 3. Содержание цинка в костной ткани человека. 1 - костная ткань практически здоровых людей, погибших в результате несчастного случая; 2 - костная ткань больных опухолью Юинга; 3 - костная ткань больных опухолью Юинга после гамма-терапии

ки, а захватывается митохондриями. Эти результаты представлены на рис. 4.

4. Изменение концентрации микроэлементов в ДНК под влиянием химиотерапии и трансформации клеток вирусом

Следующими факторами, снижающими количество микроэлементов в опухолях могут быть различные химиотерапевтические препараты. В лабораториях, руководимых Андроникашвили и Мосулишвили, с одной стороны, и Лидаком (Институт органического синтеза АН Латв. ССР) – с другой, были поставлены специальные опыты для изучения механизма действия известных противоопухолевых препаратов (ПОП) – фторатура и полиэтиленамина. Эксперименты, поставленные при карциносаркоме Уокер-256, показали, что в ДНК, выделенных из саркоматозных клеток, происходит снижение уровня содержания тех или иных микроэлементов, в зависимости от типа использованных противоопухолевых препаратов. Так, фторатур снижает в ДНК концентрацию элементов Zn, Kb, Hg, Se, Cr, а полиэтиленамин снижает концентрацию Fe, Rb, Hg, Se, Cr. Эти результаты представлены на рис. 5. При этом те же препараты практически не снижают концентрации Fe, Zn, Se непосредственно в опухолевой ткани, а содержание Hg и Cr в опухоли даже повышается. Если обратить внимание на логарифмический характер шкалы, то различия становятся особенно заметными.

Содержание металлов в ДНК сильно изменяется в присутствии вируса. В работе нашей лаборатории совместно с лабораторией Анджапаридзе (Институт вирусных препаратов МЗ ССРС) было показано, что ДНК, выделенная из гетероплоидных культуральных клеток (Т-9) после их трансформации, значительно отличается от ДНК, выделенной из нормальных диплоидных культуральных клеток (Л-63), выращенных в совершенно идентичных условиях. Разница состояла только в том,

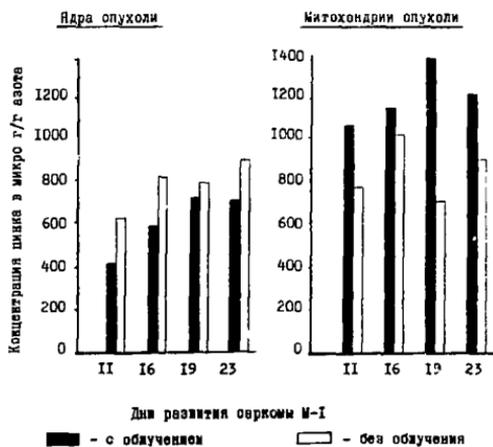


Рис.4. Влияние локального рентгеновского облучения на содержание цинка в клеточных компонентах, выделенных из саркомы M-I в динамике роста экспериментальной опухоли

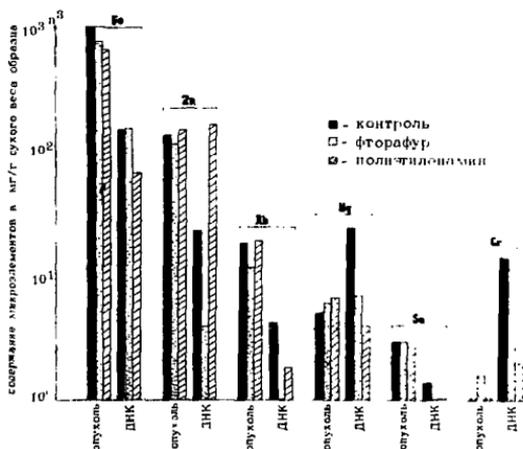


Рис.5. Влияние противоопухолевых препаратов на распределение микроэлементов в опухолевых тканях и ДНК крыс при кардиосарком. Докл. р. 56

что в какой-то момент в культуральную среду диплоидных клеток Д-63 был введен вирус.

Эти результаты представлены в таблице IV. Как видно из этой таблицы, ДНК гетероплоидных клеток заметно отличается от ДНК нормальных клеток: содержание цинка возрастает более чем в 10 раз, количество железа, ртути и селена - почти в 5 раз. Следует заметить, что диплоидные клетки Д-63 были выделены из легочной ткани человеческого эмбриона.

5. Микроэлементы и гистоны

Целая гамма микроэлементов была проанализирована методом инструментального нейтронного активационного анализа в нашей совместной работе с Детским раковым центром имени Фарбера Гарвардского университета^{/20/}. Исследование касалось нуклеиновых кислот, а также ядерных белков гистонов, выделенных из культуральных клеточных штаммов. Было показано, что многие микроэлементы входят в увеличенной концентрации не только в состав ДНК и РНК, но и в состав общих гистонов и их фракций. При этом богатая аргинином фракция гистонов F_3 содержит многие микроэлементы в значительно больших количествах, чем богатая лизинем фракция F_1 . Вместе с тем, было обнаружено наличие прямой корреляции между суммарной концентрацией тяжелых элементов во фракциях гистонов F_1 и F_3 со степенью подавления синтеза РНК нормальных лимфобластов при их выращивании в пробирке с добавлением в питательную среду фракции гистонов F_3 , выделенных из опухолевых клеточных штаммов. Эти результаты представлены на рисунке 6, на котором приведены три штамма: ССRF-СЕМ, выделенный из периферической крови девочки СЕМ, больной острой лимфоцитарной лейкемией; штамм ССRF-НСВ-2 и ССRF-НСВ-9, выделенные из периферической крови мальчика СВ,

ТАБЛИЦА-27. Содержание микроэлементов в ДНК, выделенных из нормальных (А-63)
и трансформированных вирусом клеточных культур (Т-9)

Биологический объект	В микрограммах на грамм сухого образца										Примечание
	Fe	Zn	Rb	Cr	Hg	Se	Co	Ag	Sb	Sc	
1. ДНК (Т-9) (I)	392	74	0,8	4,5	13	4,7	0,45	0,40	0,018	0,004	I урожай
2. ДНК (Т-9) (II)	288	93	1,4	4,9	5	0,6	0,26	0,19	0,075	0,002	II урожай
Среднее	340	84	I, I	4,7	9	2,6	0,36	0,25	0,047	0,003	
3. ДНК лимфоц- (1) клеток А-63	70	7,5	I	2,4	2	0,5	0,11	0,57	0,01	0,001	(I) и (2) паралель- ные об- разцы из одной се- рии пре- парата
4. ДНК лимфоц- (2) клеток А-63	74	6,9	I	2,8	2	0,5	0,11	0,55	0,01	0,001	
Среднее	72	7,2	I	2,6	2	0,5	0,11	0,56	0,01	0,001	

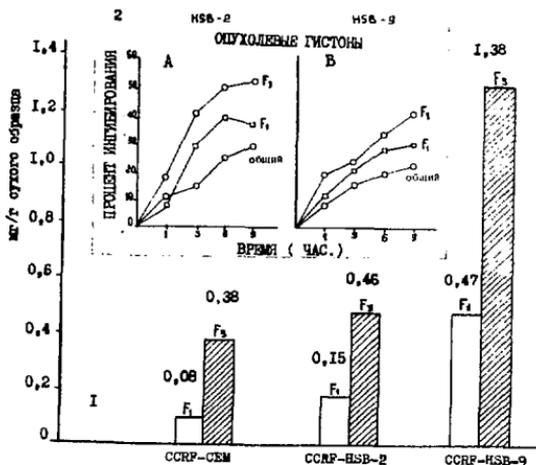


Рис. 6. 1) Результаты активационного анализа фракций гистонов F_1 и F_2 , выделенных из клеточной культуры CCRP-CEM и из индуцированных опухолей (H5B-2 и H5B-9) у новорожденных сирийских хомячков; незаширокованные столбики соответствуют уровню суммарного содержания Se, Hg, Cr, Sb, Ag, Sc, Nb, Fe, Zn, Co во фракциях гистонов F_1 в микрограммах на грамм сухого белка, а заширокованные столбики - фракция F_2 .
 2) На этом же рисунке приведены результаты работ Desai L. и др., выполненные на тех же препаратах, в которых видно, что фракция гистонов F_2 подавляет синтез РНК нормальных лимфоцитов в культуре в большей степени, чем F_1 .

больного классическим мононуклеозом на фоне существовавшей ранее лимфобластной лейкемии. Штамм НЗВ-2 был взят непосредственно из культуры, а штамм НЗВ-9 был выделен из той же периферической крови имплантированных новорожденных сирийских хомячков. Из рисунка 6 видно, что суммарное содержание тяжелых металлов в гистонах F_1 и F_3 всех трех штаммов различно, причем способ имплантации штамма с помощью сирийских хомячков приводит к заметному сдвигу в концентрации металлов во фракциях F_1 и F_3 гистонов, выделенных из штаммов СВ.

6. Комплексы металлов с РНК

Мы мало сказали до сих пор о комплексах ионов тяжелых металлов с различными фракциями РНК. Еще в работах Либермана и Оува^{/21/}, Фуджикока и Либермана^{/22/} было выявлено колоссальное влияние цинка на биосинтез нуклеиновых кислот и белков. Особенно сильно роль цинка проявилась в их опытах по регенерации поврежденной ткани. Как уже говорилось в начале статьи, в 1972-1974 гг. была отчетливо выявлена роль цинка при редубликации ДНК и транскрипции РНК^{/2,3,4,5/}. Однако его роль в биосинтезе белков оставалась до последнего времени не ясной.

Нашей группой - Л.К.Ткешелашвили и др.^{/23/} было выяснено распределение цинка между цитоплазматической, рибосомальной и матричной РНК в норме и патологии (рис.7). Резко бросается в глаза сильное увеличение цинка в составе матричной РНК после гепатомирования печени крысы. Его концентрации в матричной и рибосомальной фракциях РНК "здоровой" печени опухоленосителя почти сравниваются, а в опухоли саркомы М-1 матричная РНК по содержанию цинка снова обгоняет содержание в других фракциях.

Аналогичные картины (рис. 8,9) можно представить и для других элементов - Fe, Co, Sc, Se. Однако их распределение по

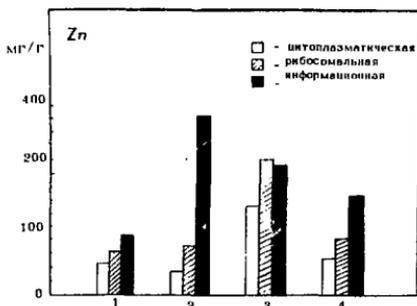


Рис.7. Содержание Zn во фракциях РНК, выделенных из печени здоровых (1), гепатэтомизированных (2) и саркоматозных (3) крыс в саркоме М-1 (4).

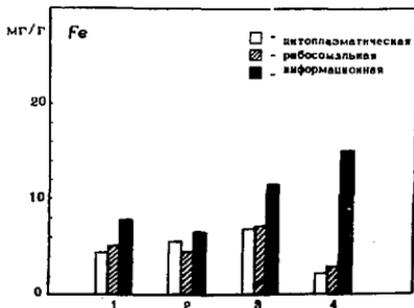


Рис.8. Содержание Fe во фракциях РНК, выделенных из печени здоровых (1), гепатэтомизированных (2) и саркоматозных (3) крыс в саркоме М-1 (4).

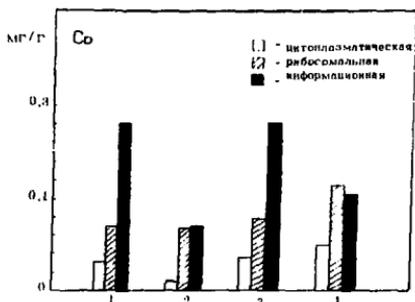


Рис.9. Содержание Co во фракциях РНК, выделенных из печени здоровых (1), гепатоканцеромных (2) и саркоматозных (3) крыс и саркомы М-1 (4).

фракциям РНК для всех четырех рассмотренных случаев совершенно различно и пока не поддается трактовке. Тем не менее несомненно, что роль, например, железа достаточно велика в синтезе раковых белков (рис. 8).

7. Тканевая зависимость концентрации металлов в ДНК

Когда мы говорим о содержании ионов тяжелых металлов в нуклеиновых кислотах, надо проявлять чрезвычайную осторожность. Дело в том, что многие годы считалось неоспоримым, что структура ДНК для данного индивидуального здорового организма является тождественной, если отвлечься от локальных ее повреждений такими мутагенными факторами, как, например, облучение.

Как выяснилось из наших опытов, проведенных с Белкобильским, Мосулишвили и др.^{/24/}, это не так. Молекулы ДНК, выделенные из разных органов животных одной и той же породы, различаются между собой по содержанию в них ионов тяжелых металлов. Как видно из рис.10, между содержанием металлов в молекулах ДНК и в соответствующем органе, из которого они были изолированы, не имеется корреляции. Рисунок 10 показывает, что, например, сурьма концентри-

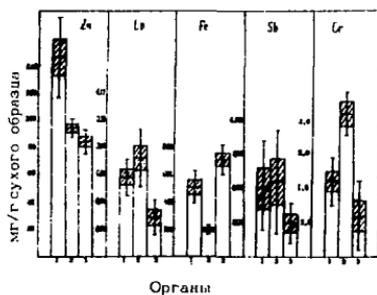
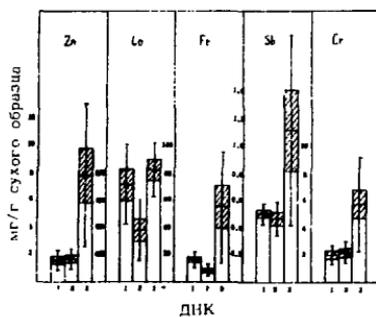


Рис. 10. Среднее содержание микроэлементов в ДНК и соответствующих органах здоровых крыс
1 - печень, 2 - почки, 3 - селезенка

руется в значительно больших количествах в ДНК, выделенных из селезенки, чем в самой селезенке. А цинка — наоборот, содержится в ДНК значительно меньше, чем в печени, из которой ДНК была выделена. Вероятно этих двух примеров совершенно достаточно для того, чтобы убедиться в справедливости сделанного утверждения.

Поэтому сравнение ДНК, изолированных как из здоровых, так и опухолевых тканей может быть произведено только в том случае, если органы вполне идентичны и принадлежат животным одной породы.

Именно эти обстоятельства разрешают нам говорить о "реальной" структуре ДНК (аналогично реальной структуре кристалла), в отличие от ее "идеальной" структуры, которая, в основном, обсуждалась до последнего времени.

Рассматривая взаимодействие ионов металлов с ДНК, нельзя не сослаться на прекрасный обзор Сисоева и др.^{125/}, опубликованный в 1976 году.

8. Заключение

Хотя проблема участия металлических ионов в опухолевом росте имеет, по-видимому, важное значение для понимания течения болезни и ее лечения, тем не менее она не является центральной при изучении канцерогенеза, и ученым предстоит еще понять связь между такими факторами, как вирусы, химические канцерогены и металлы.

При дальнейшем изучении участия ионов тяжелых металлов в развитии опухолевого роста нам предстоит решить сложную задачу о том, как и в каких условиях образуются их комплексы с нуклеиновыми кислотами, белками, аминокислотами и липидами. То же самое следует сказать и о комплексообразовании ионов тяжелых металлов с химиотерапевтическими средствами — задача, которую надо решить для полноценного обсуждения проблемы подавления опухолевого роста.

Литература

1. Loeb L.A. et. al. DNA Replication and Malignancy
(private communication)
2. Slater J.P., Mildvan A.S., Loeb L.A.
Biochem. Biophys. Res. Commun. 44, (1971), 37.
3. Scrutton M.C., Wu C.W., Goldthwait D.A.
Proc. Nat. Acad. Sci. USA, 68, (1971), 2497.
4. Auld D.S., Kawaguchi H., Livingston D.M., Valee B.L.
Proc. Nat. Acad. Sci. USA, 71, (1974), 2091.
5. Auld D.S., Kawaguchi H., Livingston D.M., Valee B.L.
Biochem. and Biophys. Res. Commun., 62, (1975), 296.
6. Андроникашвили Э.Л., Мосулишвили Л.М., Трешелашвили Л.К.
и др. Труды II Всесоюзного совещания по использованию новых
ядерно-физических методов для решения научно-технических
задач. Дубна (1976), 127.
7. Андроникашвили Э.Л., Мосулишвили Л.М., Белокобыльский А.И.
"Применение активаационного анализа в биологии и медицине"
изд. "Медицина", г.Тбилиси (1977), 33.
8. Petering H.G., Buskirk and Grim J.A.
Cancer Research, 27, (1967), 1115.
9. McQuitty J.T., Dewys W.D., Monaco L., Strain W.H., Rob Ch.G.,
Apgar J., Pories W.J.
Cancer Research, 30, (1970), 1387.
10. Dewys W.D., Pories W.J., Richter M.C., Strain W.H.
Proc. Soc. Exp. Biol. and Med., 135, (1970), 17.
11. Poswilllo D.E., Cohen B.
Nature, 231, (1971), 447.
12. Schicha H, et al., Proc. Simp. NAT in the Life Sciences
Bled., IAEA, Vienna, (1972), 451.
13. Kasperes K. et. al. *ibid*, 517.
14. Hrgovcic M. et.al. Cancer, 32, (1973), 1512.
15. Hrgovcic M. et.al. Cancer, 21, (1968), 743.

16. Андроникашвили Э.Л., Мосулишвили Л.М., Манджгаладзе В.П., Белокобыльский А.И., Харабадзе Н.Е., Ефремова Е.Ю. ДАН СССР, 195, (1970), 979.
17. Андроникашвили Э.Л. Сообщ. АН СССР. 68, (1972), 313.
18. Зайчик В.Е., Калашников В.М., Елзер В.А., Прошин В.В., Мосулишвили Л.М., Шония Н.И. Использование нейтронов в медицине, Обнинск (1976), 75.
19. Андроникашвили Э.Л., Мосулишвили Л.М., Ткешелашвили Л.К., Рчеулишвили А.Н., Матевосян А.Е. Бюлет. эксп. мед. и биол., 82, (1976), 1702.
20. Andronikashvili E.L., Mosulishvili L.K., Desai L.S., Foley G.E. et.al. Biochem. J., 152, (1976), 529.
21. Lieberman J., Ove P., J.Biol.Chem., 237, (1962), 1534.
22. Fujioka M., Lieberman J. J.Biol.Chem., 239, (1964), 1464.
23. Андроникашвили Э.Л., Ткешелашвили Л.К., Гинтури С.Н. "Применение активационного анализа в биологии и медицине", изд. "Медицирება", г.Тбилиси, (1977), 24.
24. Андроникашвили Э.Л., Белокобыльский А.И., Мосулишвили Л.М., Харабадзе Н.Е., Шония Н.И. ДАН СССР, 227, (1976), 1244.
25. Siscoff L., Grisvard G., Guille E., Progress in Biophysics and Molecular Biology. 31, (1976), 165.

РАДИОИЗОТОПНЫЙ РЕНТГЕНОФЛЮОРЕСЦЕНТНЫЙ МЕТОД ЭЛЕМЕНТНОГО АНАЛИЗА
В КЛИНИЧЕСКОЙ МЕДИЦИНЕ

В. В. Зайчик

НИИ медицинской радиологии АМН СССР, Обнинск

На предыдущем совещании по использованию новых ядерно-физических методов нами сообщалось о ряде аналитических задач клинической медицины, решенных путем активации нейтронами реактора^{1/1}. Для обеспечения широкого и скорейшего внедрения в практическую медицину разработанных нами способов диагностики, основанных в сущности на контроле гомеостаза элементного состава тканей и биожидкостей организма или поведения вводимого в организм стабильного элемента в качестве неактивной метки и реализующих для этой цели преимущества ядерно-физических методов, нами с 1975 года по предложению академика Г. Н. Флерова проводятся исследования возможностей радиоизотопного рентгенофлуоресцентного анализа (РРФА). Действительно, РРФА, располагая всеми привлекательными сторонами современных ядерно-физических методов элементного анализа (недеструктивность, инструментальность, многокомпонентность, экспрессность, массовость и т. д.), имеет ряд преимуществ, которые особенно ярко могут проявиться при применении этого метода в клинической медицине. Прежде всего к этим преимуществам относится сравнительная простота, компактность и доступность необходимой аппаратуры, что уже в настоящее время позволяет использовать метод в широкой сети медицинских учреждений. Кроме того, РРФА позволяет определять концентрации элементов в миллиграммовых навесках исследуемого вещества. Таким образом, для анализа элементного состава тканей может быть использован материал пункционных биопсий, соскобов, мазков и т. д., что значительно расширяет спектр тканей и жидкостей, которые могут быть исследованы у больного с диагностической целью. Особый интерес представляет возможность проведения с помощью РРФА исследований элементного состава тканей и органов больного в условиях *in vivo*, а также сочетание преимуществ использования неактивной метки с РРФА *in vivo*.

Собранные на базе серийно выпускаемой отечественной аппаратуры и используемые нами спектрометрические установки включают

Детекторы ПДРК с толщиной бериллиевой фольги входного окна 10 и 100 мкм, приборы ССС-2-02, многоканальные анализаторы амплитуды импульсов типа "АН" и обеспечивают разрешение около 200+200 эВ на линии 6,4 КэВ. Рентгеновскую флуоресценцию возбуждают излучением радиоизотопных источников ^{226}Ra (110 мКи), ^{137}Cs (15 мКи) и ^{241}Am (125 мКи).

Экспериментально показано, что с помощью РРФА в материале большинства высушенных биотканей и сухом остатке смесей костей за приемлемое время измерения (минуты - десятки минут) возможно количественное определение в нативных концентрациях Ca , Fe , Zn , Zr , Sr , U , Pu и, помимо этого, - в костной ткани Ca и Sr и в ткани щитовидной железы I . Так, с используемыми активностями радиоизотопных источников при часовой экспозиции в условиях тонкого слоя достигнутый предел определения с ^{55}Fe для Ca составлял $n \cdot 10^{-2}\%$, с ^{137}Cs для Ca - $n \cdot 10^{-1}\%$, Fe - $n \cdot 10^{-2}\%$, Zn - $n \cdot 10^{-3}\%$, Sr , U , Pu - $n \cdot 10^{-4}\%$, с ^{241}Am для I - $n \cdot 10^{-2}\%$.

К настоящему времени разработаны и используются в клинике института количественные методики РРФА йода в пунктатах и операционном материале опухолей щитовидной железы, Ca отдельно и Ca , Fe , Zn , Zr одновременно в биопсиях пораженного участка костной ткани, U , Fe , Zn , Zr , U в пунктатах опухолей предстательной железы, Fe в миллиграммовых количествах сухого остатка крови, Ca в цельной моче и ее сухом остатке, Br , вводимого в организм в качестве стабильной метки с целью контроля за объемом и обменом внеклеточной жидкости, в цельной сыворотке и моче ^{12-6/}. Некоторые из типичных спектров представлены на рисунке. При этом для определения со статистической ошибкой отдельного измерения не более 5% концентрация йода обычно требуется 20+30 мин, Ca - менее 1 мин, Zn - 20+30 мин, Fe и Br - несколько минут. Отсюда следует, что временные затраты для определения таких элементов, как I и Ca , сопоставимы с затратами при использовании активации нейтронами реактора, а для таких элементов, как Fe , Zn , Cu , существенно меньше, если учитывать время выдержки биообразцов после их облучения.

При проведении анализов в условиях тонкого слоя и геометрии расположения системы "радиоизотопный источник-образец-детектор", близкой к оптимальной, уровень загрузки спектрометрического тракта настолько мал, что представляется возможным увеличить активность источников почти в 100 раз, что, в свою очередь, позволяет практически на порядок снизить пороги определения или соответст-

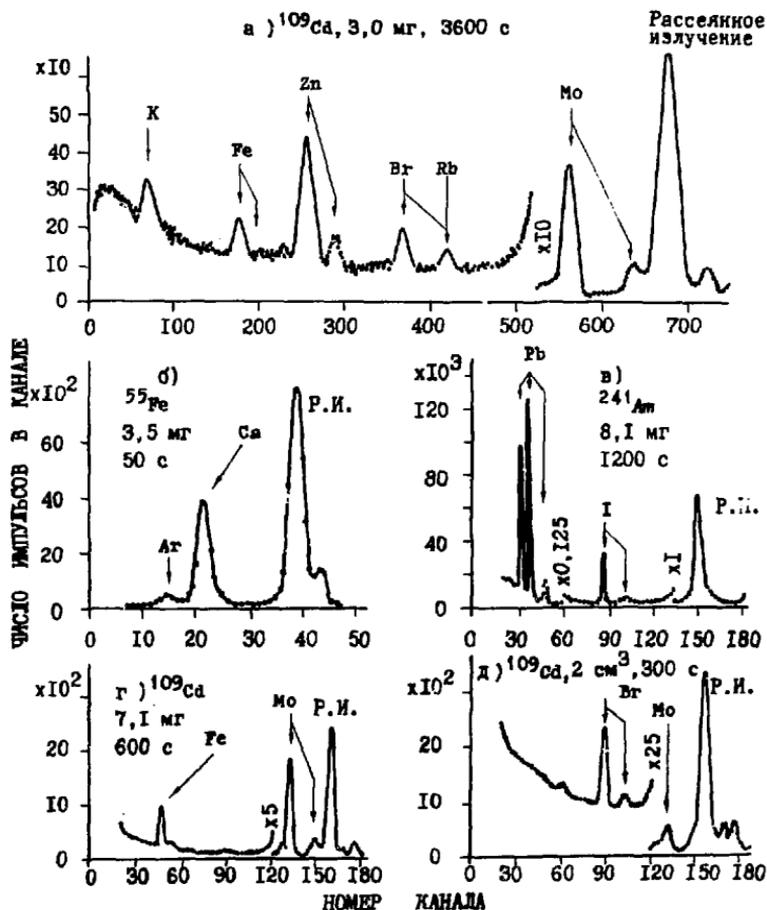


Рис. Типичные спектры пунятатов опухолей предстательной железы (а), костной ткани (б), щитовидной железы (в), образца крови (г), а также мочи больного при использовании экзогенного брома в качестве неактивной метки (д). Пики Mo и Pb обусловлены конструкционными материалами, Ar — аргонem воздуха. Приведены сухой вес образца и живое время измерения.

венно продолжительность измерений. В тех случаях, когда количество анализируемого биообразца достаточно для проведения анализа в насыщенном слое, при переходе к измерениям в этих условиях также может быть достигнуто некоторое снижение порога определения.

Как показали предварительные расчетные и экспериментальные исследования, РФФА позволяет проводить определение нативных концентраций некоторых элементов, а также концентраций экзогенных неактивных меток в тканях и внутренних органах человека в условиях *in vivo*. Однако дальнейшие работы в этом направлении требуют создания спектрометрических детекторов специальных конструкций.

Таким образом, показано, что отечественная серийно выпускаемая аппаратура позволяет в настоящее время с помощью РФФА количественно определять в биологических образцах в общей сложности 9 элементов, содержащихся в нативных концентрациях. При проведении измерений в вакууме или гелиевой среде с целью снижения поглощения флуоресценции в воздухе и исключения интерференции с $\Delta\lambda$ воздуха и при улучшении разрешения детекторов хотя бы до 200+250 эВ перечень количественно определяемых элементов может быть дополнен Cl (для большинства биообразцов), P (костная ткань) и S (волосы и ногти). Следовательно, использование в клинике только РФФА позволит определять в биообразцах концентрации более половины всех элементов, которые к настоящему времени общепринято считать жизненно необходимыми. Разумеется, вне данного сообщения остаются элементы, концентрации которых в организме в результате загрязнения окружающей среды, профессиональных условий, экстремальных и аварийных ситуаций и т.д. могут превысить порог определения метода и стать доступными для количественного анализа.

Литература

1. Е.А. Жербин, В.Е. Зайчик. Препринт ОИАИ, ДИ4-9779, Дубна, 1976, 104.
2. В.Е. Зайчик, А.И. Леонов. Тезисы IV Всесоюзного совещания по активационному анализу (Тбилиси, июнь, 1977г.). Тбилиси, 1977, 289.
3. В.Е. Зайчик, А.И. Леонов. Тезисы докладов Всесоюзного симпозиума "Современные методы определения микроэлементов" (Кишинев, декабрь, 1977г.). Кишинев, 1977, 132.
4. В.М. Калашников, В.Е. Зайчик. Там же, 134.
5. В.Е. Зайчик, А.И. Леонов. Тезисы докладов четвертой Республиканской конференции молодых физиков (Ташкент, июнь, 1978г.). Ташкент, 1978, 62.
6. В.Е. Зайчик, А.И. Леонов. Там же, 63.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ МАКРО- и МИКРОЭЛЕМЕНТОВ В НЕКОТОРЫХ
БИОЛОГИЧЕСКИХ ОБЪЕКТАХ МЕТОДАМИ АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА

И.В.Казачевский, Н.Н.Лашкул, В.Н.Левковский, А.Я.Ботвина

Институт ядерной физики АН КазССР

В настоящей работе исследовалась возможность применения инструментального нейтронно-активационного анализа (ИНАА) для определения "нормальных" концентраций макро- и микроэлементов в некоторых биологических объектах, которые могли бы служить количественными критериями экологических, патологических изменений и результатов лечения. В качестве объектов были выбраны яйца птиц и органы белых крыс в норме и при экспериментальном раке.

Активационный анализ проводился с использованием реактора и нейтронного генератора. Для измерений применялись полупроводниковые гамма-спектрометры.

В табл. I приведены результаты определения элементного состава куриных яиц и их сравнение с данными монографии /1/. Видно хорошее согласие результатов, полученных на разном материале и различными методами. Изучение элементного состава яиц других птиц показало, что соотношения большинства элементов в этих объектах близки, а в пределах одного вида - слабо зависят от происхождения объекта.

Таблица I

Концентрация элементов в куриных яйцах

Элемент	Концентрация, мг/г сухого веса				
	Желток			Белок	
	Данная работа	/I/	Данная работа	/I/	
Фосфор	11,1 ± 0,5	13,2	2,1 ± 0,2	1,4	
Азот	55 ± 2	-	148 ± 5	-	
Хлор	2,9 ± 0,2	2,8	10 ± 1	12	
Сера	2,8 ± 0,2	-	11 ± 1	-	
Натрий	1,5 ± 0,2	1,6	10 ± 1	11,8	
Калий	2,8 ± 0,2	2,5	10,4 ± 0,7	12	
Магний	0,38 ± 0,02	2,9	1,06 ± 0,07	0,7	
Железо	0,20 ± 0,02	0,24	0,05 ± 0,01	0,07	
Цинк	0,08 ± 0,01	0,07	0,003 ± 0,001	0,0035	

В табл. 2 приведено сопоставление наших результатов о содержании некоторых элементов в органах десяти здоровых крыс с литературными данными. Как следует из табл. 2, результаты определения Zn, Fe и Rb, выполненные в различных лабораториях различными методами, отличаются, как правило, не более чем в два раза. Разброс данных о концентрации Co достигает 1-2 порядков, что не позволяет провести даже качественное сопоставление. Столь же противоречивы данные о концентрации многих других элементов в органах крыс, например Cr - от 0,05 до 6 мкг/г; Sb - от 0,001 до 1,3 мкг/г, Sc - от 0,001 до 0,3 мкг/г сырой ткани. В наших опытах аналитические линии этих элементов не наблюдались. Оценка дала верхний предел концентрации во всех органах от 0,01 до 0,05 мкг/г.

Таблица 2

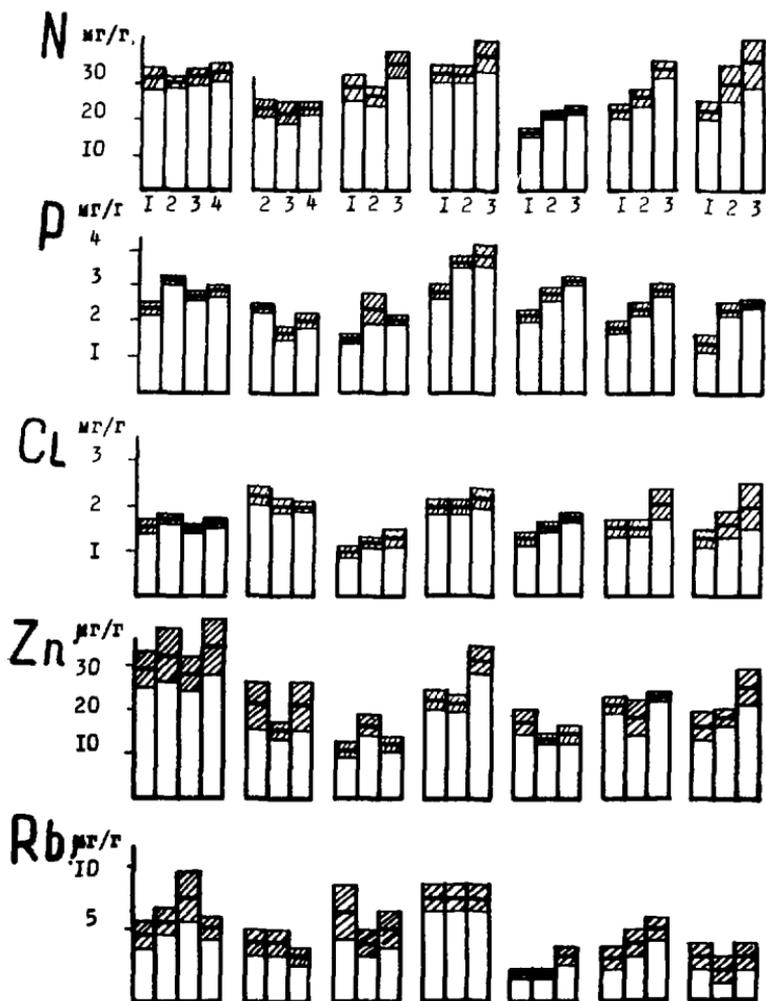
Концентрация микроэлементов в органах крыс (мкг/г) по данным разных авторов
(наши данные подчеркнуты)

Эле- мент	Печень	Сердце	Селезенка	Мозг
Zn	40 \pm 4/2/; 32 \pm 1/3/ 28 \pm 3/4/; 27 \pm 5/5/ 16,6 \pm 0,3/6/ 15,5 \pm 0,5/7/; <u>29\pm3</u> Среднее: 27 \pm 8	31 \pm 1/8/; 23 \pm 2/2/ 22 \pm 4/5/; 20,4 \pm 0,1/6/ 15 \pm 2/4/; <u>20\pm2</u> Среднее: 22 \pm 5	31 \pm 10/7/; 23 \pm 2/2/ 18 \pm 3/5/; 16 \pm 1/6/ <u>24\pm3</u> Среднее: 22 \pm 6	21 \pm 4/7/; 18 \pm 2/2/ 13 \pm 3/5/; <u>15\pm2</u> Среднее: 17 \pm 3
Fe	170 \pm 40/3/; 170 \pm 30/4/ 90 \pm 20/5/; 73 \pm 4/6/ 44 \pm 20/4/; <u>190\pm60</u> Среднее: 120 \pm 60	160 \pm 40/4/; 110 \pm 20/5/ <u>120\pm40</u> Среднее: 130 \pm 30	400 \pm 80/5/; 300 \pm 150/7/ 260 \pm 20/10/; <u>250\pm50</u> Среднее: 300 \pm 70	55 \pm 15/5/; 17 \pm 3/7/ <u>40\pm10</u> Среднее: 40 \pm 20
Rb	12 \pm 2/II/; 10 \pm 1/4/ 2,3 \pm 0,2/8/; <u>4,5\pm1</u> Среднее: 7 \pm 4	5,2 \pm 0,5/4/; 4,7 \pm 0,7/II/ <u>2,2\pm0,7</u> Среднее: 4 \pm 2	10 \pm 2/7/; 10 \pm 2/II/ <u>7\pm2</u> Среднее: 9 \pm 2	3,6 \pm 0,4/II/ 3,1 \pm 0,3/7/; <u>2,0\pm0,5</u> Среднее: 3 \pm 1
Co	0,34 \pm 0,07/5/ 0,16 \pm 0,01/10/ 0,10 \pm 0,02/4/ 0,032 \pm 0,008/9/ 0,013 \pm 0,003/2/ 0,008 \pm 0,001/7/ <u>0,10\pm0,08</u>	1,6 \pm 0,3/5/ 0,70 \pm 0,08/4/ 0,006 \pm 0,002/2/ <u>0,08\pm0,04</u>	1,4 \pm 0,2/10/ 0,27 \pm 0,006/5/ 0,014 \pm 0,007/7/ 0,008 \pm 0,001/2/ <u>0,14\pm0,06</u>	1,0 \pm 0,3/5/ 0,07 \pm 0,01/9/ 0,009 \pm 0,006/7/ 0,007 \pm 0,002/2/ <u>0,05\pm0,01</u>

Имеющиеся экспериментальные данные показывают, что для большинства элементов (в том числе и для элементов, биологическая роль которых считается доказанной) в настоящее время нельзя указать "нормальные" концентрации, которые могли служить стандартами при изучении физиологических и патологических состояний подопытных крыс.

Были также исследованы органы белых крыс с перенесенными экспериментальными опухолями - лимфосаркомой Плисса (ЛСП), саркомой-45 (С-45) и рабдомиосаркомой (РС-I). Каждый штамм переносился 10 крысам. Результаты определения некоторых элементов в органах здоровых и больных крыс представлены на рисунке. В случае фосфора отмечается систематическое повышение его концентрации в органах больных крыс. Концентрации большинства элементов в опухолях близки к концентрациям в паренхиматозных органах и существенно отличаются от концентраций в мышцах, пролиферируемых опухолью. В литературе имеются сообщения о существенных нарушениях обмена Zn при злокачественных новообразованиях /2,3,12,13/. Наши измерения показывают, что в пределах размеров опухолей ЛСП 6-21 г; С-45: 2-15 г; РС-I: 8-32 г не наблюдается статистически достоверных отклонений от нормы концентрации Zn во всех исследованных органах подопытных крыс, что согласуется с результатами Э.Л. Андроникашвили с соотр. /2/ и Д.Д. Непорядного /3/. В последние годы появился ряд сообщений /14,15/ о специфической биологической роли Rb , в частности о генетически обусловленном понижении концентрации Rb в органах линий мышей, предрасположенных к спонтанной лейкемии /14/. Из наших данных следует, что в пределах разброса (30-40 %) не наблюдается изменения концентрации Rb при экспериментальном раке. Поскольку Rb является химическим аналогом K , более объективным критерием его биологической роли, по-видимому, может служить отношение K/Rb . Согласно нашим данным, это отношение составляет $(8 \pm 2) \cdot 10^2$, что находится в хорошем согласии с данными о K/Rb отношении для различных объектов биологического происхождения ("Капуста Боуэна", стандарт "бывшая печень", кровь и сыворотка крови человека, эритроциты, печень человека, пищевая и водный рацион крыс, чай), которое лежит в пределах $(5-8) \cdot 10^2$.

Разброс результатов определения "нормальных" концентраций



печень опухоль мышца селезенка мозг почки сердце
 Рис. 1. Концентрация элементов в органах крыс при экпериментальной ране. I - контроль, 2 - ЛСП, 3 - С-45, 4 - РС-1.

элементов в биологических объектах определяется воспроизводимостью методики анализа и так называемым "биологическим" разбросом. В настоящей работе воспроизводимость методики определялась повторными анализами одних и тех же образцов и составила: для N, P, Na, Cl, Mg, Fe и Zn - $3 \pm 12\%$, для K, Br, Rb, Co и S - $15 \pm 30\%$. Эти значения воспроизводимости хорошо согласуются с данными Боуэна /16/ о воспроизводимости ИНАА стандартных биологических материалов. Среднеквадратичное отклонение результатов анализа органов различных животных в норме и патологии в наших опытах находилось в тех же пределах, следовательно, биологический разброс не превышал $10 \pm 30\%$ в согласии с точкой зрения, высказанной в /16/. С другой стороны, однако, в литературе приводится ряд противоречивых данных о существенных суточных, сезонных, возрастных, видовых, алиментарных и других "биологических" колебаниях элементного состава тканей и органов животных и человека. Если такие колебания (в несколько раз) действительно существуют, то само понятие "нормы" становится весьма неопределенным. Поэтому для выявления патологических отклонений первостепенное значение приобретает изучение пределов колебаний концентраций элементов в "норме". В решение этих вопросов существенный вклад, по-видимому, должен внести активационный анализ. Однако для широкого применения ИНАА в медико-биологических исследованиях необходима еще большая методическая работа, направленная на повышения чувствительности, точности и производительности анализа. Основные трудности здесь заключаются, во-первых, в отсутствии доступных биологических стандартов для ИНАА. По нашему мнению, хорошим материалом для создания таких стандартов могут служить яйца птиц, содержащие в нужных соотношениях практически все элементы, необходимые для образования почти полностью сформировавшегося организма. Во-вторых, должны быть разрешены проблемы мешающих анализу активностей и радиационной нестойкости биологических образцов. Как показывает опыт, радиохимическое разделение, облучение малых навесок, вакуумирование и замораживание не решают полностью этих проблем. Радикальное решение, по нашему мнению, состоит в разработке стандартных методов отбора и предварительной (до облучения) подготовки биологических объектов для ИНАА, т.е. методов разрушения органической основы, уда-

ления мешающих макроэлементов и обогащения определяемых микроэлементов.

Л и т е р а т у р а

1. В.И.Георгиевский. Минеральное питание сельскохозяйственной птицы, М. /1970/.
2. Э.Л.Андроникашвили и др. Сб. "II Советание по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народно-хозяйственных задач", Дубна, 127 /1976/.
3. Д.Д.Непорядный. Сб. "Микроэлементы в сельском хозяйстве и медицине", Киев, 629 /1963/.
4. В. Maziare et al., J. Radioanal. Chem., 37, 1977, p. 617.
5. К. Kestiš et al., J. Radioanal. Chem., 37, 1977, p. 405.
6. А.К.Баган. "Микроэлементы в медицине" И-Ф, 1969, 166.
7. F. Girardi et al., J. Radioanal. Chem., 37, 1977, p.427.
8. Б.Д.Хамракулов и др. "Микроэлементы в медицине", Ивано-Франковск, 1969, 166.
9. Л.Ф.Федосова. Сб. "Микроэлементы в медицине", Киев, 181 /1968/
10. А.И.Лянчевская. Сб. "микроэлементы в медицине", Киев, 140 /1968/.
11. M.P. Siageres et al. J. Radioanal. Chem., 37, 1977, p.445.
12. И.В.Касьяненко, О.А.Кульская. "Микроэлементы у больных раком и предопухолевыми заболеваниями внутренних органов", Киев, /1972/.
13. Г.А.Бабенко. Сб. "Микроэлементы в медицине", Киев, /1968/.
14. К. Каврачек, Brzin, 98, 1975, p. 49.
15. H.J. Bowen, Atomik Energy Rev., 13, 1975, p. 452.

ЦИТОГЕНЕТИЧЕСКОЕ ДЕЙСТВИЕ НЕЙТРОНОВ РАЗНЫХ ЭНЕРГИЙ
НА ЛИМФОЦИТЫ ПЕРИФЕРИЧЕСКОЙ КРОВИ ЧЕЛОВЕКА

Е.А. Жербин, А.В. Севаньякаев, Н.В. Лучник, Г.М. Обатуров, Ю.Г. Титте
Институт медицинской радиологии АМН СССР, Обнинск

В настоящем исследовании подробно изучены кривые доза-эффект для аббераций хромосом, индуцированных в культуре лимфоцитов периферической крови человека на стадии G_0 тепловыми нейтронами и нейтронами со средней энергией 0,04; 0,09; 0,35; 0,85; 14,7 МэВ. Источниками нейтронов служили реактор БР-10, ускоритель и нейтронный генератор. Вклад γ -излучения в дозу составил 5-10 %.

Полученные результаты подтверждают общие закономерности биологического действия нейтронов, описанные другими авторами на разных объектах, в частности линейную зависимость эффекта от дозы для аббераций хромосом при облучении нейтронами и большую их эффективность по сравнению с γ -излучением. Наряду с этим, благодаря исследованию широкого диапазона энергий нейтронов и доз облучения установлены и некоторые новые факты. Так, линейная зависимость выхода аббераций от дозы характерна лишь для нейтронов достаточно низких энергий - от тепловых до 0,85 МэВ. Нейтроны более высоких энергий, так же как и γ -излучение, характеризуются линейно-квадратичной зависимостью эффекта от дозы (Рис. I).

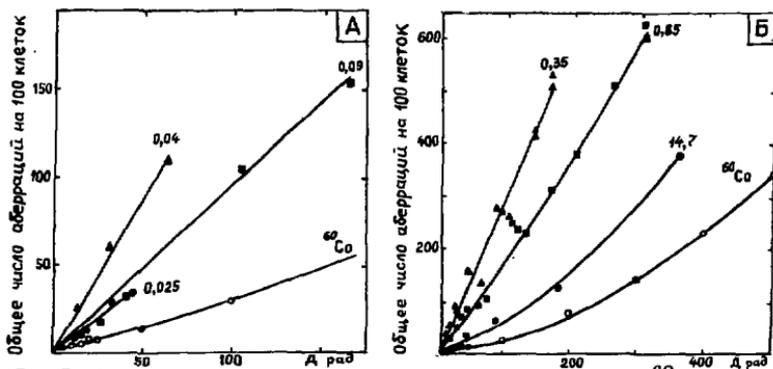


Рис. I. Зависимость доза-эффект при облучении γ -квантами ^{60}Co и нейтронами с энергиями 0,025 эВ (тепловые); 0,04; 0,09 МэВ (А) и 0,35; 0,85; 14,7 МэВ (Б).

Относительная биологическая эффективность (ОБЭ) нейтронов зависит от дозы облучения и их средней энергии. Из рис.2 видно, что при всех исследованных энергиях нейтронов максимальные значения ОБЭ наблюдались в диапазоне низких доз.

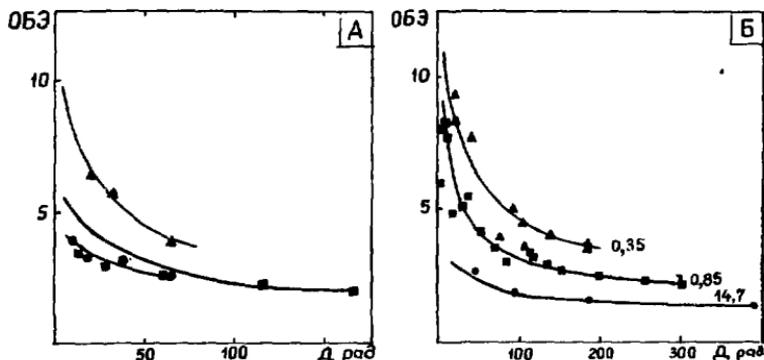


Рис.2. Зависимость ОБЭ от дозы нейтронов с энергиями: 0,025 эВ (тепловые); 0,04 и 0,09 МэВ (А); 0,35; 0,85 и 14,7 МэВ (Б).

Для промежуточных нейтронов (например, с $\bar{E}=0,35$ МэВ) ОБЭ по суммарной частоте aberrаций хромосом составляла около 18 при дозе 1 рад. Еще более высокие значения ОБЭ отмечались при сопоставлении различных типов aberrаций. Так, для указанных нейтронов при дозе 1 рад ОБЭ по дидентрикам составляет около 23, а по дидентрикам и кольцам - около 25.

Из исследованных энергий нейтронов наибольшие значения ОБЭ имели место при действии нейтронов с энергией 0,35 МэВ. Нейтроны с энергией 14,7 МэВ характеризовались наименьшей биологической эффективностью, а нейтроны остальных энергий занимали промежуточное положение. На рис.3. показана зависимость ОБЭ от энергии нейтронов, полученная из расчетных дозовых кривых для суммарного числа aberrаций хромосом. Видно, что относительно γ -излучения в диапазоне доз 25-500 рад максимальные значения ОБЭ приходится на нейтроны с энергией 0,3-0,4 МэВ. В ту и другую сторону от этой энергии ОБЭ нейтронов снижается и вновь начинает возрастать при облучении тепловыми нейтронами.

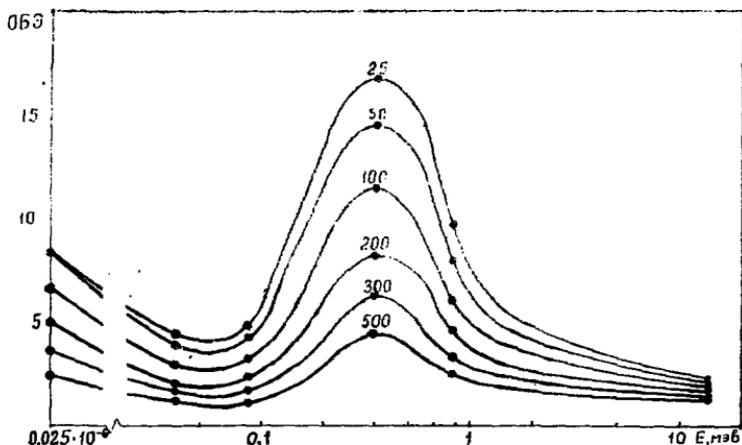


Рис.3. Зависимость ОБЭ от энергии нейтронов в диапазоне доз γ -излучения ^{60}Co 25-500 рад.

Заслуживает внимания тот факт, что пиковое значение ОБЭ достигается практически при одной и той же энергии нейтронов для совершенно разных биологических систем: растительных /1,2/, животных - клетки китайского хомьика /3/ и человека (результаты настоящего исследования). Это, возможно, связано с тем, что нейтроны с энергией именно 0,3-0,5 МэВ обладают наибольшей ЛПЭ (рис.4). Сходный характер зависимости ОБЭ от энергии нейтронов у столь разных биологических объектов может свидетельствовать о том, что у всех этих объектов, несмотря на совершенно разные тесты, используемые для оценки ОБЭ нейтронов (от мутаций до выживаемости клеток), одни и те же структуры клеток ответственны за вызываемый биологический эффект. В настоящее время есть все основания полагать, что этими уникальными структурами в клетке являются молекулы ДНК. В пользу такого предположения говорят данные о тесной связи числа невозстановленных разрывов ДНК в зависимости от ЛПЭ излучений с наблюдаемыми значениями ОБЭ /5,6/ и важной роли двойных разрывов ДНК в постлучевой гибели клеток /7,8/.

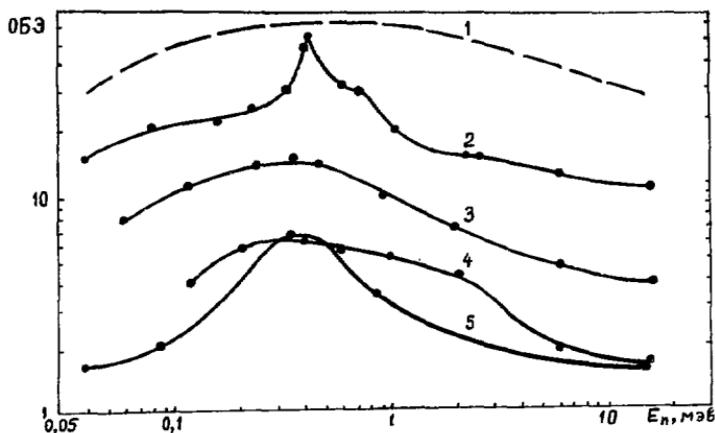


Рис. 4. Зависимость ДПС и ОБЭ для разных биологических систем от энергии нейтронов. 1—эффективная ДПС /4/; 2—соматические мутации у традисканции /1/; 3—торможение роста краешков гороха /2/; 4—выживаемость клеток китайского хомьчка /3/; 5—хромосомные aberrации в культуре лимфоцитов человека (настоящее исследование).

Проведенные исследования позволили установить и некоторые качественные отличия в спектре aberrаций, индуцированных нейтронами. По сравнению с γ -излучением при нейтронном облучении наблюдалась более высокая частота обменных aberrаций и индуцировались хроматидные aberrации (хотя облучение производилось на стадии G_0), которых практически не было при γ -облучении в аналогичных условиях. Проведенные расчеты и специально поставленные опыты с облучением только плазмы (без лейкоцитов) исключают наведенную радиоактивность объекта в качестве возможной причины появления хроматидных aberrаций при облучении клеток нейтронами в стадии G_0 .

Литература

1. J. A. Dennis, S. J. Boot. *Nature*, 215, 310, (1967).
2. H. H. Rossi et al. *Radiat. Res.*, 51, 451 (1972).
3. F. J. Hall et al. *Radiat. Res.*, 64, 245 (1975).
4. A. M. Kellerer, H. H. Rossi. *Curr. Top. Radiat. Res.*, 8, 85 (1972).
5. M. A. Ritter et al. *Radiat. Res.*, 67, 604 (1976).
6. M. A. Ritter et al. *Nature*, 206, 653 (1977).
7. D. L. Dagle et al. *Radiat. Res.*, 62, 581 (1975).
8. R. E. Painter. *Mutat. Res.*, 46, 145 (1977).

ТКАНЕВЫЕ ДОЗЫ ПРОТОНОВ И МНОГОЗАРЯДНЫХ ИОНОВ

В.Е. Дудкин

Институт медико-биологических проблем АН СССР, Москва

При использовании пучков заряженных частиц в медицине важно знать глубинное распределение доз в теле. Особый интерес представляют случаи, когда пробег частицы полностью укладывается в фантом. При этом наблюдается заметное увеличение дозы вблизи конца пробега. Максимальное значение дозы определяется величиной пика Брэгга. Реально пучки заряженных частиц, как правило, не являются моноэнергетичными, а имеют некоторый разброс по энергии, что влияет на величину максимальной дозы. С увеличением энергии и заряда падающих частиц заметно возрастает роль неупругих взаимодействий первичного излучения с ядрами тканезквивалентного вещества. Поэтому одной из наиболее важных и трудных задач является корректный учёт вклада в дозу вторичных излучений.

В настоящей работе проведены расчёты глубинных распределений доз протонов и многозарядных ионов в тканезквивалентном фантоме. Расчёты проводились для так называемой "стандартной геометрии", когда широкий параллельный пучок заряженных частиц падает нормально на переднюю поверхность полубесконечного слоя вещества толщиной 30 см. Вещество фантома выбиралось эквивалентным мягкой биологической ткани. В расчётах прохождения частиц через тканезквивалентное вещество учитывались неупругие столкновения с атомами среды, приводящие к ионизации и возбуждению и потере энергии; упругие столкновения с ядрами, приводящие к многократному рассеянию частиц; неупругие взаимодействия с ядрами с образованием вторичного излучения.

При учёте флуктуаций ионизационных потерь энергии предполагалось, что распределение длин пробегов относительно среднего значения подчиняется нормальному закону $1/\sqrt{x}$.

Вычисления показали, что доза в области пика Брэгга сильно зависит от величины шага Δh по толщине фантома, по которому производится усреднение поглощённой энергии. Так, усреднение с

с шагом $\Delta h = 1$ см, выполненное в работе^{/2/}, приводит к занижению дозы в пике Брэгга \sim в 3 раза при энергии протонов 100 МэВ. В работе^{/1/} показано, что при шаге, составляющем 0,5% от ионизационного пробега, амплитуда пика Брэгга остаётся практически неизменной.

Вклад в дозу вторичного излучения учитывался с использованием как расчётных, так и экспериментальных данных, по сечениям протон-ядерных и ядро-ядерных взаимодействий. Дифференциальные сечения выхода вторичных частиц, образуемых при неупругих взаимодействиях протонов и ядер с ядрами, рассчитывались методом Монте-Карло по модели каскад-развал. Доза от вторичных низкоэнергетических заряженных частиц, образующихся в протон-ядерных взаимодействиях, рассчитывалась на основании экспериментальных данных. На синхротронном ускорителе ОИЯИ были проведены измерения спектров вторичных частиц ($H^1, H^2, H^3, He^3, He^4$, фрагментов и ядер отдачи), генерируемых во взаимодействиях протонов с лёгкими ядрами^{/3/}. Данные по дифференциальным сечениям ядро-ядерных взаимодействий были получены в экспериментах с эмульсионными камерами, экспонированными на шарах-зондах. Измерены энергетические, угловые и зарядовые распределения вторичных частиц, образуемых при взаимодействии ядер галактического космического излучения с водородом и лёгкими ядрами эмульсии. Более детально методика расчёта доз вторичных излучений от протонов и многозарядных ионов изложена в работе^{/4/}.

В соответствии с изложенной методикой были проведены расчёты глубинных распределений доз в фантоме от моноэнергетических протонов с энергией до ~ 225 МэВ, альфа-частиц, ядер $Be^9, N^14, Si^{28}, Fe^{56}$ с энергиями до ~ 1000 МэВ/нуклон. Расчёты проводились методом Монте-Карло. Статистическая ошибка расчёта доз первичных частиц не превышала 3-5%, погрешность в оценке дозы от вторичных частиц составляла от 10 до 35% в зависимости от типа и энергии налетающей частицы. Кроме того, были проведены вычисления дозовых распределений для моноэнергетических пучков. В этом случае полагалось, что энергетическое распределение падающего пучка частиц описывается нормальным законом.

Проведённые расчёты показали, что вклад в дозу вторичных частиц существенно зависит от энергии и заряда падающего излучения. Для лёгких первичных ядер неупругие взаимодействия приводят к увеличению дозы за счёт накопления вторичного излучения. Для

ядер Be и N отношение полной дозы к дозе первичного излучения составляет 1,1-1,7 для энергий до $\sim 0,6 \frac{\text{ГэВ}}{\text{нуклон}}$ и возрастает до нескольких единиц с увеличением энергии частиц. Для более тяжёлых ядер Si и Fe это отношение меньше. С увеличением заряда падающей частицы множественное образование вторичных частиц не компенсирует уменьшения дозы за счёт выбивания сильноионизирующих первичных частиц. Для первичных частиц с зарядом $Z \geq 10$ и энергией несколько сот МэВ на нуклон пробег до неупругого столкновения становится сопоставим или даже меньше ионизационного пробега. Поэтому необходимо достаточно корректно учитывать неупругие взаимодействия ядер с ядрами.

Максимальная доза в пике Брэгга уменьшается с ростом энергии, что обусловлено возрастанием роли электромагнитного и ядерного взаимодействия излучения с веществом. Более существенно это сказывается для частиц с меньшими зарядами.

На рисунке приведено отношение максимальной дозы в пике Брэгга к дозе на поверхности фантома в зависимости от энергии и типа падающих моноэнергетических частиц. Как видно из рисунка, наиболее благоприятное соотношение доз в плане использования пучков для целей лучевой терапии может быть достигнуто тяжёлыми частицами. Однако следует учитывать глубину залегания опухоли, сопоставляя её с ионизационным пробегом частицы. В некоторых случаях может оказаться важной локализация выделенной энергии в малых объёмах. Тогда использование тяжёлых ионов также может быть предпочтительным, т.к. пики Брэгга для частиц с высоким Z менее размыты.

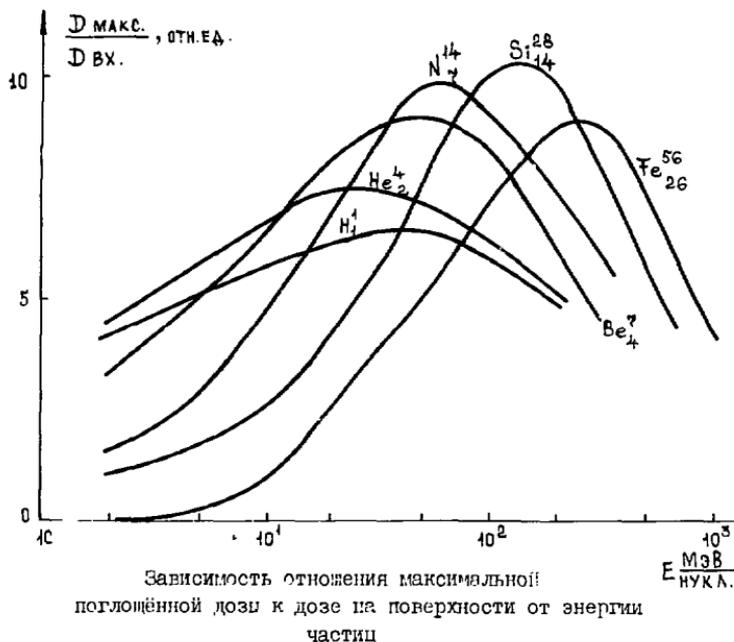
Учёт энергетического разброса падающего пучка частиц приводит к заметному изменению формы кривой распределения глубинной дозы. При этом происходит уширение пика Брэгга и уменьшение его амплитуды. С ростом заряда первичного излучения этот эффект сказывается более сильно.

Так, введение дисперсии в 2% от средней энергии первичного пучка $50 \frac{\text{МэВ}}{\text{нуклон}}$ приводит к уменьшению амплитуды пика Брэгга в 3,2 раза для ядер Be_4^9 и 2,7 раза для протонов. Ширина пика на

на полувысоте, отнесённая к ионизационному пробегу, составляет в этих случаях 0,2 для ядер Be_4^9 и 0,1 для протонов.

Литература

1. Атлас дозовых характеристик ионизирующих излучений, под ред. В.Е.Ковалёва, М., Атомиздат, 1978г.
2. C.D.Zerby, W.E.Kinney, Nuclear Instruments and Methods, vol.36, 125 (1965).
3. V.E.Dudkin et al., Health Physics, vol.23, 663 (1972).
4. В.Е.Дудкин и др., в сб. "Вопросы дозиметрии и защиты от излучений", вып.14, 72 (1975), М., Атомиздат.



СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ РОСТА СФЕРОИДОВ ПЕРЕД НА ОБЛУЧЕНИЕ
ГАММА-ЛУЧАМИ ЦЕЗИЯ, РЕНТГЕНОВСКИМИ ЛУЧАМИ, π^- - МЕЗОНАМИ,
БЫСТРЫМИ НЕЙТРОНАМИ И ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

Г. Эригребер, Н. Копц, Х. Абель

Центральный институт молекулярной биологии АН ГДР

Постоянно возрастает интерес к применению излучения с высоким ЛДЭ в терапии опухолей. Особенно интересно его применение для облучения многоклеточных сфероидов /1/, представляющих собой хорошую модель опухоли, в целях изучения ряда проблем в радиобиологических фундаментальных исследованиях и лучевой терапии /2/. Многоклеточные сфероиды, как и опухоли, имеют в своем центре некротическую зону, переходящую к периферии в наружный слой активных делящихся клеток. Поэтому после облучения многоклеточных сфероидов кривые выживаемости их клеток, изолированных друг от друга путем трипсинизации, имеют типичный многокомпонентный вид /3,4/. Сфероиды из клеток китайского хомяка У79-4 выращивались в среде Игла с добавлением 15% телячьей сыворотки, 25 мкг/мл сульфата декстрана и антибиотиков. После облучения диаметр сфероидов измерялся под микроскопом, и определялась степень повреждений их поверхности, вызванных облучением /5/.

Облучения гамма-лучами цезия, π^- - мезонами /6/ и тяжелыми ионами проводились в ОИЯИ в Дубне, облучения рентгеновскими лучами и быстрыми нейтронами - в ГДР.

На рис. 1а-d показаны измеренные кривые роста сфероидов с первоначальным диаметром в 500 мкм ($\sim 10^5$ клеток). Они имеют качественно одинаковый характер для разных видов радиации: в течение 2 суток после облучения повреждения поверхности еще не наблюдаются, но скорость роста замедляется пропорционально дозе облучения. С появлением изменений на поверхности сфероидов их рост еще более замедляется по сравнению с контрольными сфероидами.

После фазы восстановления через несколько дней скорость роста увеличивается до скорости роста контрольных сфероидов; при высоких дозах фаза восстановления отсутствует. Значимые различия в результатах для сфероидов со средними диаметрами в 350 и 500 мкм в момент облучения не были получены.

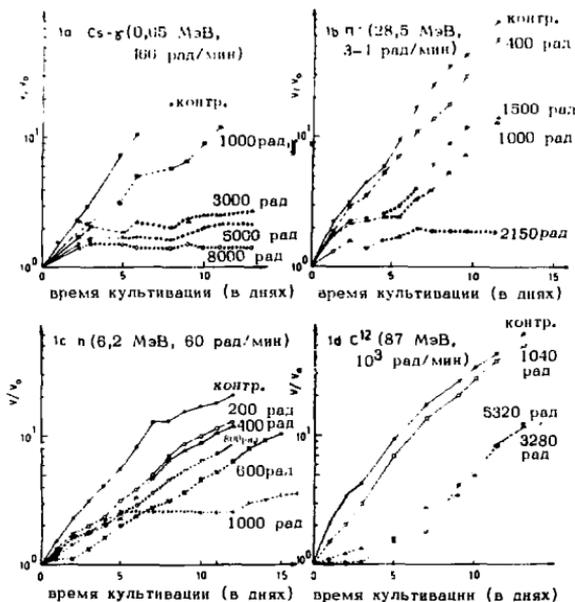


Рис. 1: Кривые роста сфероидов после облучения разными видами радиации. По оси абсцисс — время после облучения, по оси ординат — отношение объема сфероидов в момент наблюдения к первоначальному объему.
 - - - - - легкие повреждения,
 тяжелые повреждения.

Из рис. 1 можно получить следующие величины для разных видов радиации в зависимости от дозы:

- начальное нарастание $k = I/T_e$, которое является мерой скорости роста (T_e = время, в течение которого объем сфероида увеличится в 2,7 раза) (рис. 2);
- максимальное торможение роста, которое было определено как минимальное отношение относительного увеличения объема сфероидов, облученных дозой D , и контрольных сфероидов (рис. 3);
- интервал времени, когда под микроскопом можно наблюдать повреждение поверхности сфероида (рис. 2).

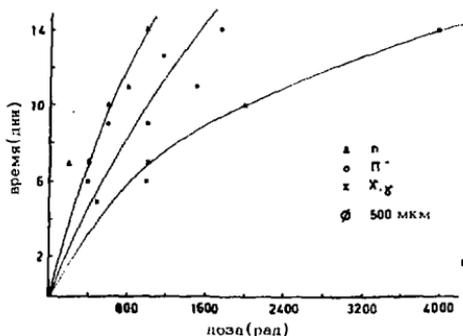


Рис.2: Время наблюдения повреждения поверхности сфероидов в зависимости от дозы.

Таблица 1. Значения относительной биологической эффективности (ОБЭ) для α -мезонов и быстрых нейтронов

Вид радиации	Критерий		
	Начальное относительное нарастание k/k_0	Максимальное торможение роста	Повреждение через 10 суток
α -мезоны	1,2	1,9	2,1
нейтроны	4,6	3,1	3,3

Эти значения ОБЭ являются грубым приближением, особенно потому, что условия в среде, несмотря на одинаковую температуру во время облучения, не были идентичны из-за различных мощностей дозы и, следовательно, времени облучения. Особенно при облучении α -мезонами из-за малых мощностей дозы сказывается недостаток кислорода в среде во время длительного облучения. Группа в ФГТ [7], изучила ОБЭ по критерию выживаемости при десятипроцентном уровне выживания изолированных из сфероидов клеток примерно 1,5 для α -мезонов.

Эта таблица может создать впечатление, что при нейтронах терапевтический выигрыш больше, чем при α -мезонах. Однако надо указать, что быстрые нейтроны имеют это значение ОБЭ в большом облученном объеме, следовательно, тоже в здоровой ткани.

π^- -мезоны имеют указание ОБЭ только в диапазоне пика Брегга, то есть только в опухоли. Вне пика Брегга ОБЭ для π^- -мезонов примерно 1. Из этого следует, что π^- -мезоны имеют решающее преимущество перед нейтронами, особенно при фракционированных облучениях.

Особный интерес представляют эксперименты с тяжелыми ионами, потому что с их помощью можно моделировать на сфероидах частичное локальное облучение опухолей. На рис. 1 показаны кривые роста сфероидов после облучения ионами C^{12} с остаточным пробегом 180 мкм. Глубина проникновения ионов составляет $\sim 1/2$ диаметра сфероида. Замедление роста зависит от дозы, но даже при высоких дозах имеет место восстановление всего сфероида. Интересно было, что при дозе примерно 5000 рад наблюдались тоже слабые повреждения поверхности необлученной стороны сфероидов. После облучения ионами O^{18} с пробегом только 90 мкм замедление роста отсутствовало и наблюдались только слабые повреждения облученных сторон сфероидов.

Чтобы в конечном итоге получить экспериментальные данные, которые можно было бы использовать для планирования лучевого лечения π^- -мезонами или тяжелыми ионами, нам кажется важным продолжать дальнейшие исследования на многоклеточных сфероидах.

Литература

1. R.I. Sutherland et al. J.Nat.Cancer Inst. 46, 113 /1971/.
2. R.E. Durand et al. Cancer Res. 33, 213 /1973/.
3. J. Kopp, stud. biophys. 68, 159 /1978/.
4. J. Kopp, stud. biophys. 70, 161 /1978/.
5. J. Kopp, studia biophysica, in press
6. В.М. Абазов и др., ОИИИ ПЗ-8079 /1974/.
7. F. Dertinger et al. Int. J. Radiat. Biol. 29, 271 /1976/.

РАДИОБИОЛОГИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ ПИ-МИНУС-МЕЗОННОГО
ПУЧКА ЛЯП ОИЯИ

В.М.Абазов, Е.П.Череватенко
Объединенный институт ядерных исследований, Дубна
А.А.Вейнсон, В.В.Мещерикова,
Т.А.Фадеева, Н.Д.Шмакова
Онкологический научный центр АМН СССР, Москва

В настоящее время лучевая терапия во всем мире пошла по пути исследования и применения новых видов излучений, которые позволили бы повысить эффективность облучения злокачественных опухолей. Одним из наиболее перспективных путей усовершенствования лучевой терапии может стать применение пучков пи-минус-мезонов. Отрицательные пи-мезоны имеют ряд существенных преимуществ перед широко применяемыми квантовыми видами излучений. Это, во-первых, благоприятное распределение поглощенной дозы, обусловленное брэгговским максимумом, и, во-вторых, возможность преодоления радиорезистентности гипоксических клеток опухоли благодаря вкладу вторичных частиц с высокой плотностью ионизации в области максимума кривой Брэгга.

Измерения были выполнены на пи-минус-мезонном пучке, созданном на синхротроне Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ для медико-биологических и физических исследований^{1/}. Пионный пучок с энергией около 30 МэВ содержал примеси электронов, отрицательных мюонов и нейтронов. Суммарный вклад в дозу от всех примесей составлял около 25% от дозы в пике Брэгга. Дозовый вклад нейтронов фона, просачивающихся через апертуру пи-мезонной линзы и возникающих при захвате пи-мезонов атомными ядрами, не превышал 10% от полной дозы пучка в пике Брэгга, составляющей 3,5 - 5,0 рад/мин. Отношение дозы в максимуме глубинного дозного распределения к дозе на входе составляло 2,2. Ширина дозного максимума по 80% дозе равнялась 1,2 см флексигласа или 1,5 см H₂O. Среднеквадра-

тичный радиус пучка в фокусе пи-мезонной линзы был близок к 5 см.

В настоящей работе, являющейся частью обширной программы предклинического исследования, определены основные радиобиологические параметры пи-минус мезонного пучка: величина относительной биологической эффективности (ОБЭ), коэффициента кислородного усиления (ККУ) и способность клеток к восстановлению при фракционированном облучении по критериям клонообразования клеток HeLa и китайского хомяка, а также по критерию индукции хромосомных аберраций в клетках костного мозга мышей. Методика культивирования клеток и приготовления препаратов костного мозга для хромосомного анализа и способ создания аноксических условий для клеток *in vitro* и *in vivo* описаны ранее^{/2/}. Облучение клеток проводили в ампулах, изготовленных из тканеквивалентной пластмассы (поликарбоната). С помощью плексигласовых блоков пик Брэгга совмещали с центром облучаемого объекта. В качестве стандартных видов излучения использовали гамма-лучи цезия-137, а также 200-кВ рентгеновское излучение.

Величина ОБЭ пи-минус мезонного пучка по сравнению с 200-кВ рентгеновским излучением (55 рад/мин) по критерию клонообразования клеток HeLa составила 1,3 - 1,4. Облучение клеточной суспензии производили при 0°C в условиях полного подавления процессов восстановления. По выживаемости клеток китайского хомяка ОБЭ пи-мезонов по отношению к гамма-лучам (6 рад/мин) составила 1,7 (рис. 1а). Для этого вида клеток величины D_0 и n равны соответственно 143 ± 4 рад и 1,2 для пи-мезонов и 253 ± 23 рад и 1,6 для гамма-лучей.

Величины ОБЭ, полученные на двух видах клеток, хорошо совпадают между собой, поскольку биологическая эффективность 200-кВ рентгеновского излучения в 1,2 раза выше, чем гамма-лучей^{/3/}.

ОБЭ пи-минус-мезонного пучка по сравнению с гамма-излучением по критерию индукции хромосомных аберраций в разных экспериментах колеблется от 1,5 до 1,8 (рис. 1б), причем кривая доза-эффект не зависит от мощности дозы излучения, что связано с низкой способностью костномозговых клеток к репарации сублетальных повреждений.

Эксперименты, выполненные в Лос-Аламосе и в Цюрихе^{/4,5,6/} на пи-мезонных пучках такой же интенсивности, подтвердили результаты нашего исследования - величины ОБЭ, полученные этими авторами, близки к полученным нами.

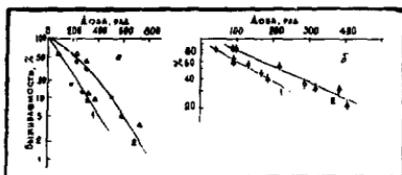


Рис.1. Выживаемость клеток китайского хомяка (а) и индукция хромосомных aberrаций в клетках костного мозга мышей (б) при пи-мезонном (1) и гамма-облучении (2).

На рис. (б) по оси ординат - число клеток без хромосомных aberrаций, %.

На рис.2 представлены результаты нескольких экспериментов по определению величины ККУ на клетках китайского хомяка при пи-мезонном и гамма-облучении (4,4 рад/мин). Среднее значение величины ККУ, определенное по соотношению доз, снижающих выживаемость до 20% от контроля, составляет $2,1 \pm 0,1$ для пи-мезонов и $2,7 \pm 0,1$ для гамма-лучей. Величина ККУ, определенная по индукции клеток с хромосомными aberrациями (рис.3), равна 2,1 для пи-мезонов и 2,5 для 200 киловольтного рентгеновского излучения.

Величина терапевтического выигрыша, определяемая отношением ККУ двух сравниваемых видов излучения при низких мощностях доз пи-мезонов и гамма-лучей, равна 1,2 - 1,3. При повышении интенсивности пи-минус-мезонного пучка величина терапевтического выигрыша должна увеличиться.

Результаты экспериментов Раджу на пи-мезонном пучке с интенсивностью до 1 рад/мин¹⁷⁾ и предварительные результаты, полученные в Лос-Аламосе на высокоинтенсивном пучке¹⁸⁾, дают величину ККУ пи-минус мезонов, равную 1,5 при ККУ гамма-лучей в среднем 2,5.

Хотя о способности клеток к восстановлению при фракциониро-

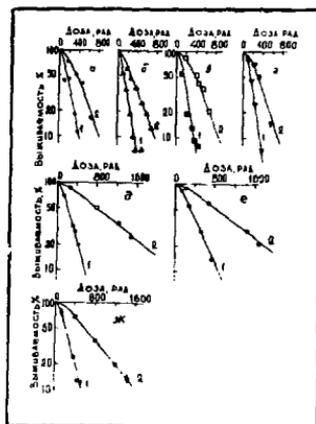


Рис.2. Выживаемость клеток китайского хомяка при облучении пи-мезонами (а, б, в, г) и гамма-лучами (д, е, ж) в окисленном (1) и аноксическом (2) состояниях.

ванном облучении довольно хорошо можно судить по величине плеча кривой выживаемости, нами были проведены специальные эксперименты (рис.4), в которых способность клеток к восстановлению от сублетальных повреждений изучали широко известным методом дробления дозы на две фракции с интервалом в несколько часов.

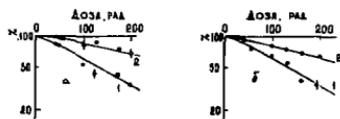


Рис.3. Индукция хромосомных aberrаций в клетках костного мозга мышей при облучении пи-мезонами в условиях нормальной оксигенации (1) и в ануксии (2). Рис.(а) - $KKV = 2,2$; (б) - $KKV = 2,0$.

По оси ординат - число клеток без хромосомных aberrаций, %.

Величина фактора восстановления, определяемая отношением клеточной выживаемости при фракционированном облучении к выживаемости при однократном облучении, для пи-минус мезонов составляет 1,5; для гамма-лучей - 2,0. Кроме того, после облучения пи-мезонным пучком наблюдается длительная задержка процесса репарации. Аналогичные результаты о способности клеток к восстановлению при фракционированном облучении пи-минус-мезонами получены другими авторами [10].

Представленные данные о высокой относительной биологической эффективности отрицательных пи-мезонов в пике Брегга, о меньшей, по сравнению с квантовыми видами излучений, величине KKV и сниженной способности клеток к восстановлению в сочетании с физическим фактором благоприятного распределения поглощенной дозы по оси пучка свидетельствуют о принципиальной целесообразности использования этого вида излучения в лучевой терапии и о необходимости развития физико-технической базы пи-минус-мезонной терапии опухолей.

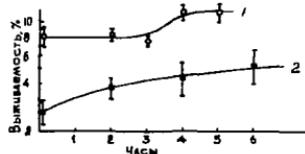


Рис.4. Выживаемость клеток китайского хомяка в зависимости от интервала времени между двумя фракциями при пи-мезонном (1) и гамма-облучении (2).

Литература

1. В.М.Абазов, В.П.Джелепов, Е.С.Кузьмин, А.Г.Моложанов, О.В.Савченко, Г.П.Решетников, Е.П.Череватенко. Препринт ОИИ Р13-8079, Дубна, 1974.
2. А.А.Вайнсон, Н.Л.Шмакова, В.В.Мещерикова, Т.А.Фадеева, С.П.Ярмоненко. Радиобиология, 17, №6, 874-880, 1977.
3. J.F.Scaife. Int.Radiat. Biol. 15, 3, 279-283, 1969.
4. P.Todd, C.R.Shonk, G.West et al. Radiology, 116, 179-180, 1975
5. H.Dertinger, C.Lucke-Huhle, H.Shlay, K.F.Weibzahn. Int. Radiat. Biol. 29, 3, 271-277, 1976.
6. A.H.W.Nias, D.Green, D.Major et al. Brit.J.Radiol. 47, 563, 800-804, 1974.
7. M.R.Raju, M.Granapurani, G.Richman. Brit.J.Radiol. 45, 178-181, 1972.
8. M.R.Raju, J.F.Dicello, T.T.Trujillo, M.M.Kligerman. Radiology, 116, 191-193, 1975.
9. M.M.Elkind, J.D.Sutton. Nature, 184, 1293-1295, 1959.
10. A.J.Mill, J.D.Lewis, W.S.Hall. Brit.J.Radiol. 49, 357-359, 1976.

ПРЕДВАРИТЕЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ
ФИЗИЧЕСКИХ И РАДИОБИОЛОГИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ ПАРАМЕТРОВ НЕЙТРОННОГО ПУЧКА ОТ ВНЕШНЕЙ МИШЕНИ СИНХРОЦИКЛОТРОНА ЛЯП ОИИ

В.П.Джелепов, О.В.Савченко, Е.П.Череватенко
Объединенный институт ядерных исследований, Дубна
Т.А.Фадеева, Н.Л.Шамакова, С.П.Ярмоненко
Онкологический научный центр АМН СССР, Москва

В настоящее время наряду с использованием традиционных видов излучения — гамма-квантов и электронов всё большее применение в лучевой терапии получают пучки тяжелых частиц и, в частности, нейтронов. Клинические исследования с помощью нейтронов проводятся в ряде стран (Англия^{1/}, США^{2,3/}, ГДР^{4/}).

Применение нейтронов в лучевой терапии обусловлено, главным образом, их более низким значением кислородного отношения (КО) по сравнению с электронами и гамма-квантами, имеющими $КО \approx 2,7$. Для нейтронов низких энергий величина КО имеет минимум около 1,4 в области несколько сот кэВ, затем плавно возрастает с увеличением энергии, достигая максимального значения 1,8 — 1,6 в области энергий 6—30 МэВ, и затем постепенно уменьшается с возрастанием энергии нейтронов.

Рисунок 1 иллюстрирует изменение КО в области высоких энергий^{5/}. Как видно из рисунка, величина КО стремится к значению 1,1 для нейтронного пучка, полученного при бомбардировке $Be+Al$ мишени 100-МэВ протонами. Понижение КО с возрастанием энергии, по-видимому, связано с увеличением вклада в поглощенную дозу в ткани от сильноионизирующих частиц, возникающих при взаимодействии нейтронов с ядрами атомов кислорода, углерода и азота по отношению к протонам отдачи.

Кроме того, в ряде недавних работ Раджу и др.^{6/} было показано, что сравнительно небольшая (10—20%) добавка радиации с высоким значением ЛПЭ непропорционально сильно понижает кислородное отношение (с 2,5 до 1,8—1,5). Поэтому комбинированная лучевая тера-

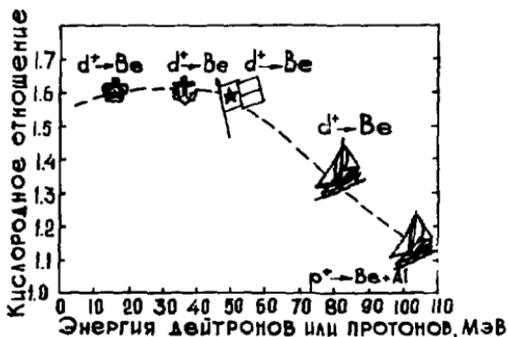


Рис. 1. Изменение кислородного отношения нейтронов в зависимости от энергии ускоренных дейтронов или протонов на циклотронах: корона - Медицинского научно-исследовательского совета (Англия); якорь - Военно-Морской Лаборатории США; флаг - Техасского университета; яхта - Мерилендского университета США^{15/}.

пия, например, протонами и нейтронами высоких энергий, сочетающая преимущества геометрических факторов дозного распределения протонного пучка и ряда факторов биологического действия нейтронного пучка, может оказаться более эффективной при лечении больших резистентных опухолей по сравнению с терапией, использующей каждый из этих видов излучения в отдельности. Такая комбинированная лучевая терапия, в принципе, могла бы стать возможной на интенсивных пучках установки "Ф" после завершения реконструкции синхротрона ЛЯЦ.

Физические и радиобиологические параметры протонных пучков этих энергий в настоящее время хорошо изучены. Однако для нейтронных пучков с энергиями в сотни МэВ подобные данные являются далеко не полными. Известны, в частности, глубинные распределения доз, измеренные в 1967 г. в ЛЯЦ ОИЯИ^{17/} и ЦЕРНе^{18/} для пучков нейтронов, полученных от внутренних мишеней ускорителей. Однако из-за недостаточной мощности доз (5-7 рад/час) измерить величину КО для этих пучков не представлялось возможным. С целью получения такой информации на синхротроне ЛЯЦ ОИЯИ был опробован способ получения высокоэнергетического нейтронного пучка с помощью внешней мишени.

Схема получения нейтронного пучка на внешней мишени ускорителя, моделирующая условия получения на установке "Ф" терапевтического нейтронного пучка, показана на рис.2. Выведенный из камеры синхротрона пучок протонов с энергией 640 МэВ и интенсивностью около 0,15 мкА ($\sim 10^{12}$ протон/с) фокусируется на толстую бериллиевую мишень. Нейтроны, вылетающие под 0° , очищаются от примеси заряженных частиц в поле магнита СП-37, проходят стальной коллиматор длиной 3,6 м и диаметром 10 см в защитной стене и попадают в водный фантом с размерами 50x50x70 см³, расположенный на расстоянии 5,7 м от мишени. Оптимальная толщина бериллиевой мишени, равная 36 см, была определена в непосредственных измерениях зависимости мощности дозы нейтронного пучка от толщины мишени, результаты которых представлены на рис.3.

Измерение глубинных и радиальных дозных распределений в фантоме проводилось с помощью калиброванного дозиметра типа VA-J-18 с диаметром шаровой камеры 16 мм, наполненной воздухом и имеющей воздухоэквивалентные стенки толщиной 1 мм. По результатам измерений радиальных и глубинных распределений было получено изодозное распределение в воде высокоэнергетического нейтронного пучка с диаметром поперечного сечения 10 см, которое изображено на рис.4. Приведенное на нем распределение характеризуется рядом благоприятных для терапии геометрических факторов. Это — наличие максимума на глубине 5–20 см, значение дозы в котором примерно в 2 раза превышает входную дозу, что резко снижает лучевую нагрузку на поверхность тела; слабая расходимость пучка с глубиной проникновения; достаточно равномерное распределение дозы по сечению пучка и крутой спад её по краям пучка. На этом же рисунке кружочками обозначены места расположения ампул с культурами клеток для радиобиологических исследований.

Мощность дозы, измеренная в максимуме дозного распределения с помощью дозиметра VA-J-18 и плоскопараллельной ионизационной камерой с тканезквивалентными стенками, наполненной тканезквивалентным газом, давших с точностью 10% одинаковые результаты, составила для полученного нейтронного пучка около 60 рад/час, что обеспечило возможность проведения серии радиобиологических экспериментов по определению К0.

В качестве критерия для определения величины К0 использовалась способность к клонообразованию клеток китайского хомяка ли-

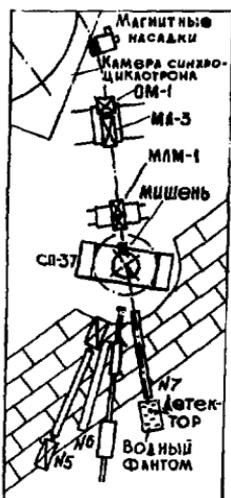


Рис.2. Схема получения высокоэнергетического нейтронного пучка на внешней мишени синхротрона ДИКАСТРОНА ДМ-1.

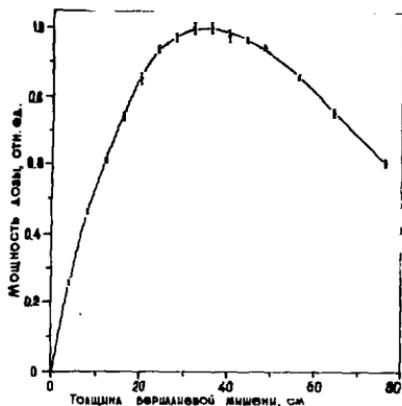


Рис.3. Зависимость мощности дозы нейтронного пучка, выходящего из толстой бериллиевой мишени под 0° к падающему 340-MeV протонному пучку.

нии В-II-1JFAF-28, анеуплоидного клона 43I, облученных в условиях нормальной оксигенации и в аноксии. Методика культивирования клеток детально описана ранее^{/9/}. Облучение клеток проводилось в тканеэквивалентных ампулах из поликарбоната. Ампулы помещали в водный фантом на глубине 1 см, 13 см и 36 см по ходу пучка, как показано на рис. 4. Величину КО определяли по соотношению равноэффективных доз в аноксии и в условиях нормальной оксигенации (рис. 5).

По предварительным результатам серии из четырех экспериментов, выполненных на описанном нейтронном пучке, величины КО на глубине 1 см и 13 см составили соответственно $(1,0 \pm 0,1)$ и $(1,3 \pm 0,06)$; на глубине 36 см КО не превышает 1,5. Для гамма-излучения ^{137}Cs при мощности дозы $4,4 \text{ рад/мин}$ величина КО равна $2,7 \pm 0,1$ ^{/9/}.

ОБЭ исследованного пучка по сравнению с гамма-лучами при мощности дозы 42 рад/мин по предварительным данным на тех же глубинах фантома составила соответственно 1,3; 1,2; 1,0.

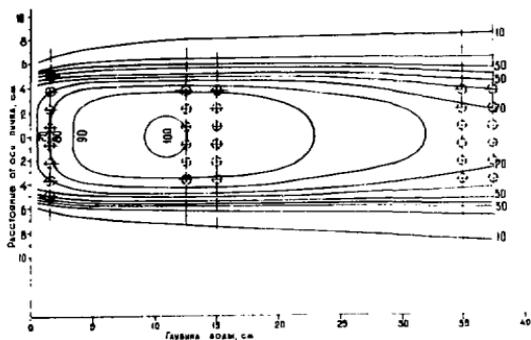


Рис.4. Изодозные распределения в воде высокоэнергетического нейтронного пучка диаметром 10 см.

Учитывая зависимость КО и ОБЭ от мощности дозы, для окончательного суждения о количественных характеристиках изучаемого пучка нейтронов необходимо исследовать эти параметры для гамма-лучей при мощности дозы ~ 1 рад/мин.

Кривые выживаемости клеток после нейтронного облучения имеют достаточно большое плечо ($Dq \approx 100$ рад; $n \approx 2,0$), что указывает на значительную способность клеток к восстановлению. Поскольку у гипоксических и аноксических клеток способность к репарации, по-видимому, снижена, данный фактор в сочетании с низким КО, нивелирующим различия в первичной поражаемости клеток, независимо от степени их оксигенации, можно, с нашей точки зрения, рассматривать как положительный, так как объем восстановления в нормальных тканях будет значительно больше, чем в опухоли.

Полученная впервые радиобиологическая оценка нейтронов с энергией в несколько сот МэВ позволяет прийти к следующему заключению.

Сочетание благоприятного дозного распределения полученного нейтронного пучка, позволяющего резко уменьшить лучевую нагрузку на поверхность тела, и низкого значения КО по всей глубине проникновения нейтронов создаст некоторые новые возможности для повышения эффективности лучевой терапии, а увеличение на один-два порядка интенсивности нейтронных пучков на установке "Ф" позволит

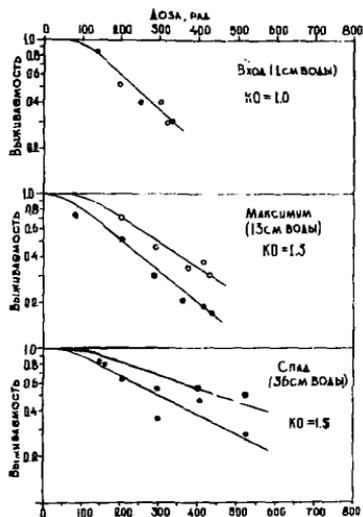


Рис.5. Выживаемость клеток китайского хомяка при облучении нейтронами в оксигенированном (●) и аноксическом (○) состояниях.

осуществить на сооружаемом в ЛПД ОИЛИ медико-биологическом комплексе клинические испытания таких нейтронных пучков как отдельно, так и в комбинациях с пучками других частиц.

Литература

1. R.L.Morgan. In "Modern Trends in Radiotherapy" (Ed. by T.J. Desley and C.A.P.Wood) Butterworths, London, 1967, v.1, p.171-186.
2. D.H.Hussey and G.H.Fletcher. Europ.J.Cancer, 1974, v.10, p.357-360.
3. P.Wootton, H.Bichsel, J.Benma, K.A.Weaver, D.L.Williams and W.G.Wyckoff. Europ.J.Cancer, 1974, p.265-266, v.10.
4. A.LesseL. In "Fortschritte der Onkologie. Grundlagen der Neutronentherapie" (Ed.by Von Graffi A., Matthes Th.,

- Magdon E.) Academie Verlag, Berlin, 1975, B.1, s.113-119.
5. E.J.Hall. In: Proc.of an Int.Workshop, Key Biscayne, Florida (October 1-3, 1975) p.188-202.
 6. M.R.Raju and J.H. Jett. Radiation Research 60, 473-481 (1974)
 7. М.Зельчинский, М.М.Комочков, Б.С.Сычев, А.П.Черватенко.
Препринт ОИИИ, PI -3587, Дубна, 1967
 8. J.Vaarly and A.H.Sullivan. Phys.Med.Biol. 1969, v.14, No.2, 269-276
 9. А.А.Вайнсон, Н.Л.Шлакова, В.В.Мещерикова и др. Радиобиология, 1977, 17, 6, 874-880.

ФИЗИКО-ДОЗИМЕТРИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ИСТОЧНИКОВ НЕЙТРОНОВ
(РЕАКТОРА БР-10, УСКОРИТЕЛЯ НГ-2,5 И НЕЙТРОННОГО ГЕНЕРАТОРА НГ-150М)

С.П.Калчигашев, Г.М.Обатуров, В.В.Дуба

Институт медицинской радиологии АМН СССР, Обнинск

В настоящее время для решения фундаментальных и прикладных задач биологии и медицины широко применяются нейтроны разных энергий и потоков. Для этого используются различные ядерные установки. Если на ускорителях тяжелых заряженных частиц возможно получение квазимонохроматических нейтронов с энергиями от десятков кэВ до десятков МэВ, но с относительно малыми потоками, то ядерные реакторы являются интенсивными источниками тепловых нейтронов и нейтронов спектра деления. В соответствии с энергией нейтронов и их интенсивностями методы исследования характеристик полей нейтронов, поглощенных доз могут быть разными.

В настоящей работе изложены данные по физико-дозиметрическим характеристикам пучков нейтронов из каналов реактора БР-10, мишеней ускорителя НГ-2,5 и нейтронного генератора НГ-150М, на которых проводятся радиобиологические исследования с широким набором объектов и тест-эффектов. Данные по спектрам нейтронов из каналов П-2 и В-3 реактора БР-10 получены в работах ^{1,2}. Для определения абсолютных потоков использовались трековые детекторы с делющимися веществами и активационные детекторы ³. Определение поглощенных доз смешанного гамма-нейтронного излучения проводилось с помощью пары дозиметров: стандартный ферросульфатный раствор и дозиметры ИКС. В последних измерениях использовались также гомогенная ионизационная камера и альминиевая камера с воздушным наполнением. Измерения потока тепловых нейтронов из канала Т-4 проводились с помощью активационного (Au^{197}) и ферросульфатного дозиметра с добавкой борной кислоты. Для продуктов реакции $\text{B}^{10}(n, \alpha)\text{Li}^7$ значение радиационно-химического выхода принималось равным 4,2 мол./100 эВ ⁴. В таблице I представлены характеристики полей нейтронов из трех каналов реактора БР-10. Данные приведены к мощности реактора 1 МВт.

Данные, полученные разными методами, согласуются между собой с точностью 5-10 %. Из таблицы I видно, что при типичной мощности реактора 4-6 МВт радиобиологические исследования с радиочувствитель-

ными объектами можно проводить на всех трех каналах. Следует отметить низкий выпад гамма-излучения в дозу. Исследования же с радиорезистентными биообъектами практически возможно только на пучках канала Б-3.

Таблица I. Плотности потока нейтронов, тканевая керма нейтронов и поглощенные дозы излучений.

К а н а л ы	1	Б-3		1 П-2	1 Т-4
Расстояние от центра реактора, м	3,0	4,20	8,25	3,0	3,0
Средние энергии нейтронов, МэВ	0,85	0,85	0,85	0,35	тепловые
Плотности потоков нейтронов, 10^{12} н/см ² с	15±3	6,2±1	1,46±0,30	1,4±0,3	0,53±0,08
Тканевая керма, рад/мин	128	60±10	12,5	7,6	0,092±0,014
Поглощенная доза, рад/мин	-	64±5	13,8±1,2	7,5±0,6	-
$D_T / (D_n + D_T)$, %	4,2	3±0,3	4,8	3,5	8

Для исследования распределения поглощенной дозы в фантомах кроме вышеуказанных методов использовались следующие: полупроводниковый дозиметр с полиэтиленовым радиатором в токовом режиме, а также метод, основанный на изменении оптической плотности полиметилметакрилата (ПММА) под действием излучения. Последний метод при высоких интенсивностях излучения дает возможность получить данные по распределению поглощенных доз через 1 мм. Из исследований следует, что равномерное распределение поглощенной дозы по биообъекту толщиной около 6 см (крысы) создается при двустороннем облучении нейтронами из канала Б-3 реактора БР-10.

При экспериментах на нейтронном генераторе НГ-150М нами использовался набор дозиметров из ферросульфатного раствора. Значение σ для нейтронов с энергией 14,1-14,7 МэВ принималось равным $10,5-11,5$ мол/100 эВ⁴. При экспериментах с нейтронами из литиевой и тритиевой мишеней ускорителя протонов КГ-2,5 использовались трековые детекторы, которые помещались перед образцами с биологическими объектами. На установке НГ-150М можно обеспечить мощность дозы нейтронов с энергией 14 МэВ, равную 185 рад/мин, на расстоянии 1,6 см от тритиевой мишени и токе дейтронов 2,2 мА. На установке КГ-2,5 с использованием литиевой мишени получены нейтроны со средними энерги-

яны 40 кэВ и 92 кэВ с мощностью дозы 4,3 рад/мин и 7,1 рад/мин, соответственно, при токе протонов 150 мкА, а с использованием третиковой мишени получены нейтроны со средними энергиями от 0,35 мэВ до 1,07 мэВ с мощностями дозы от 0,6 рад/мин до 4 рад/мин.

Из этих данных следует, что на базе отечественных ускорителей заряженных частиц можно проводить радиобиологические исследования с использованием нейтронов с энергиями от десятков кэВ и выше. Однако малые потоки нейтронов ограничивают круг исследований радиочувствительными биообъектами.

Нейтроны разных средних энергий с потоками, достаточными для проведения радиобиологических исследований, можно получать на лучках каналов П-2 и Б-3 с использованием фильтров из разных материалов. Расчеты показывают, что с помощью фильтров из железа толщиной 30 см можно создать на каналах П-2 и Б-3 пучки нейтронов со средними энергиями 200 и 500 кэВ при мощности дозы 3 и 30 рад/мин соответственно. Использование полиэтиленового фильтра толщиной 10 см дает возможность на базе канала Б-3 реактора БР-10 сформировать пучок нейтронов со средней энергией 1,5 мэВ при мощности дозы 30-36 рад/мин.

До сих пор остается неизвестной радиобиологическая значимость медленных тяжелых заряженных частиц при облучении нейтронами. Получить эти сведения из исследований с нейтронами в диапазоне энергий 1-100 кэВ представляет большую трудность из-за малой интенсивности нейтронов этих энергий. Можно предложить другой метод исследования роли низкоэнергетических тяжелых частиц, который заключается в изучении действия быстрых нейтронов на моноклеточные слои в условиях отсутствия равновесия для быстрых протонов. В этом случае биологический эффект будет обусловлен в основном медленными протонами и тяжелыми ионами. Нами проведены расчеты спектра вторичных частиц, спектра ЛДЭ, распределения поглощенной дозы и ее составляющих для микронных слоев тканеэквивалентного вещества при облучении нейтронами из канала Б-3 и П-2 реактора БР-10. Данные по средним значениям представлены в таблице 2 для двух глубин слоев 1 и 30 мкм.

Из таблицы 2 видно, что в условиях отсутствия протонного равновесия существенно смягчается действующий спектр протонов, увеличивается вклад в поглощенную дозу тяжелых частиц и упругих ядерных столкновений (УЯС). На основе этих данных в настоящее время начаты радиобиологические эксперименты.

Таблица 2. Дозовые характеристики нейтронов на глубинах
I и 30 мкм ткани.

Глубина, мкм	Средняя энергия протона, кэВ	ЛПЭ, кэВ/ мкм	Доза, %		Вклад в дозу ионов C, N, O %,	Вклад УЛС в поглощенную дозу, %
			от кер- мк	от кер- мк		
I	П-2	80	191	27,4	32	15
	Б-3	170	145	16	31,5	15
30	П-2	280	96	83	12	5,4
	Б-3	670	96	76	13	4,1

Литература

1. И.Б.Кеирим-Маркус, С.Н.Крайтор, В.И.Попов и др. In: *Dosimetry in Agriculture Industry, Biology and Medicine*. Vienna, 1973, p.607.
2. Л.А.Трыков, В.П.Семенов, А.Н.Николаев *Атомная энергия*, I, 56 /1975/.
3. С.П.Капчигашев, Г.М.Обатуров, Э.Г.Тятте, Н.Н.Аристархов, И.А.Ефимов, Э.И.Зейнатов, В.А.Шалин. *Медицинская радиология*, IO 64-67 /1977/.
4. А.К.Пикаев. *Дозиметрия в радиационной химии*, изд-во "Наука", М. 1975, 273-275, 293-294.

НЕКОТОРЫЕ ФИЗИЧЕСКИЕ И РАДИОБИОЛОГИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПУЧКОВ ИМПУЛЬСНЫХ ПЕРИОДИЧЕСКИХ РЕАКТОРОВ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ

О.В.Комова, В.М.Назаров, М.Стояка, Т.А.Бадеева, Н.Л.Шмакова

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна,

Онкологический научный центр АМН СССР, Москва

Введение

В последние годы, в дополнение к уже традиционным применениям атомных реакторов в медицине и биологии, наметились новые направления их использования. После 30-летнего "раздумья" начато практическое применение быстрых нейтронов в лучевой терапии ^{1/}, все большее внимание исследователей привлекает нейтронзахватная терапия ^{2/}, начинает широко использоваться активационный анализ *in vivo*. Увеличение количества высокопоточных экспериментальных реакторов, развитие техники создания и вывода специализированных пучков нейтронов различных энергий позволяет в настоящее время расширить применение нейтронов в медико-биологических исследованиях.

С целью изучения возможностей использования высокопоточных реакторов на быстрых нейтронах в медико-биологических исследованиях на реакторе ИБР-2 ^{3/} создается специализированный канал ^{4/}. Ввиду того, что действующий в ОИЯИ реактор ИБР-30 ^{3/} является аналогом ИБР-2 по спектральным характеристикам пучков, то на нем уже начаты радиобиологические исследования.

1. ИБР-30 и ИБР-2 как источники быстрых нейтронов

В настоящее время в практике лучевой терапии и в радиобиологии используются в основном пучки быстрых нейтронов со средней энергией в спектре более 6 МеВ ^{1/}, получаемые по реакциям

${}^9\text{Be}(d, n){}^{10}\text{B}$, ${}^9\text{Be}({}^3\text{He}, n){}^{11}\text{C}$, $\text{D}(d, n){}^3\text{He}$ на циклотронах или 14 МэВ нейтроны по $\text{T}(d, n){}^4\text{He}$ реакции на каскадных генераторах.

Требуемая для лучевой терапии и радиобиологии мощность дозы (20 - 30 рад/мин.) достигается на указанных источниках на расстояниях в 100 см от мишеней. В каналах экспериментальных атомных реакторов мощность дозы значительно выше. Например, на выходе канала реактора ВВР-С в 3 м от активной зоны мощность дозы только от нейтронов превышает 600 рад/мин. /5/. Однако использовать такие пучки в чистом виде в лучевой терапии не представляется возможным из-за низкой средней энергии нейтронов (менее 1,0 МэВ). Пропуская нейтроны реактора через специально подобранные фильтры,

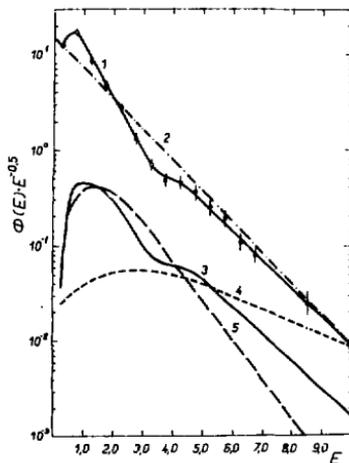


Рис. 1. Спектры нейтронов. 1 - ИБР-30, $\bar{E} = 1,5$ МэВ для нейтронов с энергией более 0,5 МэВ, измеренный при помощи ядерных эмульсий. 2 - спектр деления ${}^{235}\text{U}$ тепловыми нейтронами. 3 - ИБР-30, после фильтра из 4 см Zr , H_1 , e и 2,5 см вольфрама. 4 - спектр нейтронов по реакции ${}^9\text{Be}(d, n){}^{10}\text{B}$ при энергии дейтронов 11 МэВ. 5 - то же, но при энергии дейтронов 7,5 МэВ.

Как видно, спектр нейтронов после такого фильтра становится близким к спектру нейтронов, полученных при бомбардировке толстой бериллиевой мишени 11-MeB дейтонами.

В пучках ИБР-2 расчетные спектры аналогичны, но с учетом большей мощности дозы (до 500 рад/мин на 8 м от активной зоны) возможна установка более толстых фильтров, при которых можно, согласно расчетам, увеличить среднюю энергию нейтронов до 5 - 6 MeB, сохранив в пучке мощность дозы 40 - 50 рад/мин. Такие пучки будут соответствовать источнику нейтронов от циклотронов с энергией дейтонов более 15 MeB и с током не менее 100 мкА на толстой бериллиевой мишени (реакция ${}^9\text{Be}(d, n){}^{10}\text{B}$). При установке такого фильтра уменьшается вклад в дозу гамма-лучей, спектры которых до и после фильтра представлены на рис.3 ж).

На выходе из канала реактора ИБР-30 - рис.2 - были измерены абсолютные значения мощностей доз от нейтронов и гамма-лучей различными методами. Усредненные по всем измерениям значения мощностей доз при мощности реактора 18 кВт представлены в таблице I. Ошибки в определении доз от нейтронов не превышали $\pm 10\%$, а от гамма-лучей - $\pm 30\%$.

Таблица I.

Фильтр	Доза от нейтронов, D_n рад/мин	Доза от гамма-лучей, D_γ рад/мин	D_γ/D_n , %	Средняя энергия нейтронов, MeB
без фильтров	2,0	0,82	41	0,7
4 см $ZrH_{1,8}$	0,93	0,36	39	3,0
2,5 см W	0,83	0,092	11	1,5
2,5 см W+	0,43	0,076	17,5	3,0
4 см $ZrH_{1,8}$				
20 см Pb	0,083	0,0055	6,7	1,5

При необходимости больших мощностей доз (500 - 20 рад/мин) от нейтронов радиобиологические исследования проводятся в канале пневмотранспорта, распределения доз по длине которого представлены на рис.4.

ж) Спектр в чистом пучке измерен гамма-спектрометром с NaJ(Tl) кристаллом. Спектр после фильтра расчетный.

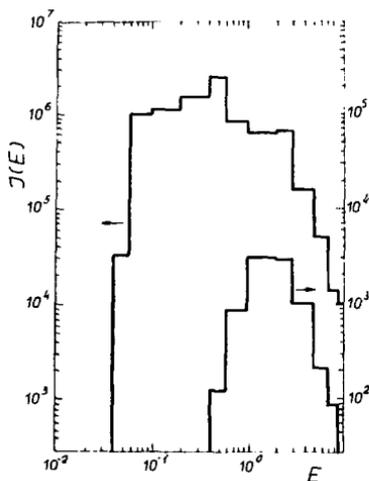


Рис. 3. Спектры гамма-лучей на выходе канала № 2. Верхняя гистограмма - нефльтрованный пучок. Нижняя гистограмма - с фильтром (4 см ZrH_2 + 2,5 см W). $J(E)$ - поток квантов, квант/см²·с, E - энергия квантов, МэВ.

2. Экспериментальное определение выживаемости клеток в культуре

Объектом исследования служили клетки китайского хомька линии V-79 и В-II-ii -FAP-28, клонного клона 43I, выращиваемые в монослое на среде следующего состава: 40% среды Игла, 40% среды 199, 20% бычьей сыворотки, 100 ед/мл пенициллина и 100 мкг/мл стрептомицина. Для эксперимента клетки 2-3-суточной культуры, находящейся в экспоненциальной стадии роста, снимали 0,3% раствором трипсина и суспензировали до получения одиночных клеток. Облучение клеток проводили в ампулах из поликарбоната объемом 0,3 мл. После облучения суспензию разводили до нужной концентрации и расфасовали в стандартные флаконы Карреля. Флаконы инкубировали 8 - 9 суток в термостате, воздушная среда в котором была обогащена 5%

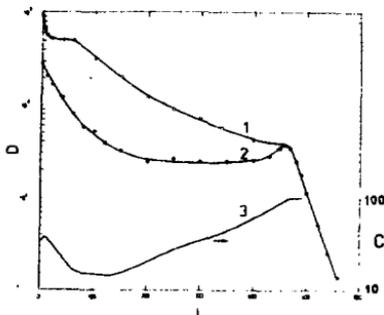


Рис. 4. Распределение доз по каналу пневмотранспорта.

1 - быстрые нейтроны, 2 - гамма-лучи, 3 - отношение

$D_{\gamma}/D_n \cdot 100, \%$; D - мощность дозы, рад/мин,

L - расстояние от конца трубы пневмотранспорта, см,

$C = D_{\gamma}/D_n, \%$.

CO_2 . Образовавшиеся из выживших клеток колонии фиксировали 10% раствором формалина и окрашивали метиленовой синькой. Процент выживших при облучении клеток определяли по соотношению числа колоний, содержащих 50 и более клеток в опытной и контрольной пробах. При посеве свежеприготовленной суспензии эффективность колониеобразования в контроле составляла - 70-80%, при длительном облучении она падала до 50-60%.

Для определения величины кислородного эффекта создавали анаэробические условия в клеточной суспензии. Для этого в ампулы с подготовленной для опыта клеточной суспензией добавляли по 300 - 400 тысяч метально облученных клеток (5-6 крэд рентгеновского или гамма-облучения), взятых в 0,1 мл среды. В некоторых случаях вместо метально облученных клеток в опытную суспензию помещали кусочек мышцы мшеч. Воздух над суспензией замещали аргоном, ампулы инкубировали 1,5 часа до облучения в термостате. За это время клетки или мышцы полностью потребляли весь кислород. В этих условиях при облучении с большой мощностью дозы гамма или рентгеновскими лучами величина КЭ всегда была выше 2,8. В условиях нормальной оксигенации были получены кривые выживаемости клеток ($S(D)$) для обоих спектров нейтронов ($\bar{E} = 0,7$ МэВ и $\bar{E} = 3,0$ МэВ), а в анаэробии только для нейтронов с $\bar{E} = 0,7$ МэВ. Для

примера на рис.5 приведены зависимости $S(D)$ в аноксии и нор-

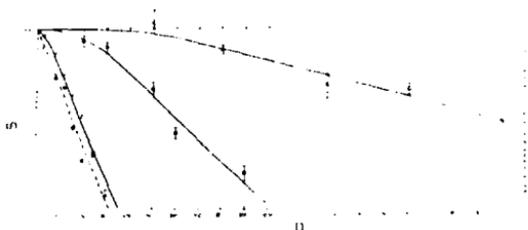


Рис. 5. Кривая выживаемости клеток китайского хомяка линии V-79. ●● - нормальная оксигенация, справа гамма-лучи ^{60}Co , слева - нейтроны; ▲▲ - аноксия, справа - гамма-лучи ^{60}Co , слева - нейтроны; --- - расчетная кривая по модели Катца. S - выживаемость в относительных единицах; D - доза в рэдах.

мальной оксигенации для нейтронов с $\bar{E} = 0,7$ МэВ и гамма-лучей. По кривым выживаемости были определены значения ОБЭ и КЭ. Для нейтронов с $\bar{E} = 0,7$ МэВ ОБЭ = $5,5 \pm 1,2$ КЭ = $1,2 \pm 0,2$; а для нейтронов с $\bar{E} = 3,0$ МэВ ОБЭ = $3,0 \pm 0,3$. Рассчитанная по модели Катца зависимость $S(D)$ хорошо описывает экспериментальные точки.

3. Получение радиобиологических характеристик по модели Катца

Согласно модели Катца /7/, выживаемость клеток в культуре при облучении их моноэнергетическими нейтронами можно рассчитать по выражению:

$$S = \exp(-N\Gamma) \left\{ 1 - \left[1 - \exp\left(-N \frac{D_j}{D_n}\right) \right]^m \right\}, \quad (2)$$

где N - флюэнс нейтронов с энергией E_n , $\Gamma = \sum_j \varphi_j(E, E_n) \sigma_j(E) dE$, $\varphi_j(E, E_n)$ - поток заряженных частиц типа j в интервале от E до $E + dE$ на один нейтрон с энергией E_n ,

$$\sigma_j(E) = \sigma_0 \left[1 - \exp\left(-\frac{\sum_j^2(E)}{\beta_j^2(E) k}\right) \right]^m = \sigma_0 P_j(E)$$

- выражение для поперечного сечения инактивации клетки, в котором $P_j(E)$ представляет собой вероятность инактивации клетки од-

ной заряженной частицей с эффективным зарядом $Z^* = Z [1 - \exp(-125\beta_j Z^{-2/3})]$ и относительной скоростью β_j ; m , k , D_0 и δ_0 - параметры, получаемые в экспериментах на заряженных частицах и гамма-лучах (m - критическое число мишеней в клетке, k - константа, характеризующая размер мишени, D_0 - доза, приводящая к снижению выживаемости в 1 раз, δ_0 - "насыщенное" сечение инактивации).

Доза D_{γ} , создаваемая редкоионизирующей частью трека частиц (δ - электроны) определялась по выражению:

$$D_{\gamma} = \sum_j \int \varphi_j(E, E_n) L_j(E) [1 - p_j(E)] dE, \quad (3)$$

в котором $\sum_j \int \varphi_j(E, E_n) L_j(E) dE$ - поглощенная доза от одного нейтрона с энергией E_n ; здесь $L_j(E)$ - ЛПЭ частицы или ядра сорта j . ЛПЭ частиц для влажной ткани брались из работы Армстронга и др. [8].

В случае мононаправленного пучка нейтронов для частиц, рождаемых в бесконечной, относительно их пробега, среде по теории транспорта было получено следующее выражение для потока внутри среды:

$$\varphi_j(E, E_n) = \frac{1}{L_j(E)} \int_E^{E_{\max}} N_j(E) dE, \quad (4)$$

где $N_j(E)$ - энергетическое распределение рождаемых частиц или ядер.

В случае упругого рассеяния на n ядрах

$$N_j(E) = \delta_{n,n}(\theta)_E \frac{4\pi n}{E_{\max}}, \quad (5)$$

где $\delta_{n,n}(\theta)_E$ - дифференциальное сечение рассеяния в системе ц.м., взятое в шкале энергии ядра отдачи, $E(\theta, E_n) = \frac{E_{\max}}{2}(1 - \cos\theta)$, $E_{\max} = \frac{4ME_n}{(M+1)^2}$ - максимальная энергия, передаваемая нейтроном с энергией E ядру с массой M .

При упругом рассеянии нейтрона на водороде (везтроном в системе ц.м.), из уравнений (4) и (5) получаем соотношение для потока протонов:

$$\varphi_p(E, E_n) = \frac{\sum_{n,n}(E_n)}{L_p(E)} \left(1 - \frac{E}{E_n}\right), \quad (6)$$

где $\sum_{n,n}(E_n)$ - макроскопическое сечение упругого рассеяния нейтронов на водороде.

Сечение упругого рассеяния $\delta_{n,n}$ рассчитывалось по выражению (I). Согласно описанной методике расчета были получены кривые выживаемости $S(D)$ трех видов клеток (таблица 2) для моноэнергетических нейтронов в интервале 0,05 - 10 МаВ. В расчетах учитывалась

Таблица 2 /10/

Тип клеток	$\sigma_0, \text{см}^2$	$D_0, \text{эрг/см}^3$	K	m
T - I, N ₂	$6,7 \cdot 10^{-7}$	$4,6 \cdot 10^4$	1300	2,5
T - I, O ₂	$6,7 \cdot 10^{-7}$	$1,7 \cdot 10^4$	1000	2,5
Китайский хо- мик, O ₂	$5,0 \cdot 10^{-7}$	$1,95 \cdot 10^4$	1400	2,5
Nella, O ₂	$5,6 \cdot 10^{-7}$	$1,4 \cdot 10^4$	750	3,0

только упругое рассеяние на водороде и кислороде ткани, т.к. энергетические потери нейтронов с энергией ниже 10 МэВ в основном (более 90%) определяются этими реакциями, рис.6.

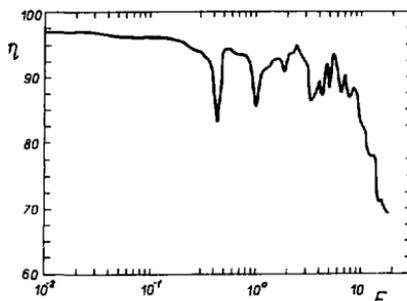


Рис. 6. Доля энергии (η) в ткани от упругого рассеяния нейтронов на ядрах водорода. η = кэрма Н/кэрма ткани $\cdot 100, \%$; E - энергия нейтронов, МэВ. Значения кэрма взяты из таблиц Баха /13/.

Кривые выживаемости для гамма-лучей моделировались 10-МэВ моно-энергетическими протонами.

По кривым выживаемости были получены зависимости ОБЭ (E_n) и КЭ (E_n). Полученные результаты представлены на рисунках 7,8, 9,10,11 в сравнении с некоторыми экспериментальными данными.

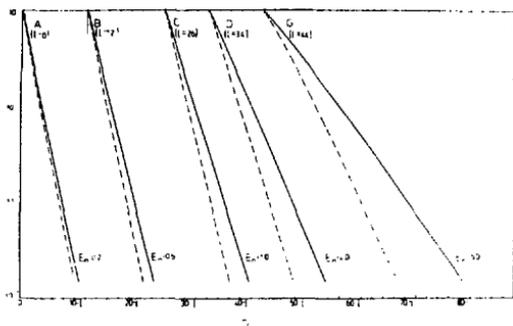


Рис. 7. Зависимость выживаемости клеток Т-Г от поглощенной дозы моноэнергетических нейтронов с энергиями 0,2; 0,5; 1,0; 2,0 и 5,0 МэВ. Пунктирные линии - в условиях нормальной оксигенации, сплошные - в условиях аноксии. S - выживаемость, отн. ед., D - доза, МэВ/г · 10⁻⁹.

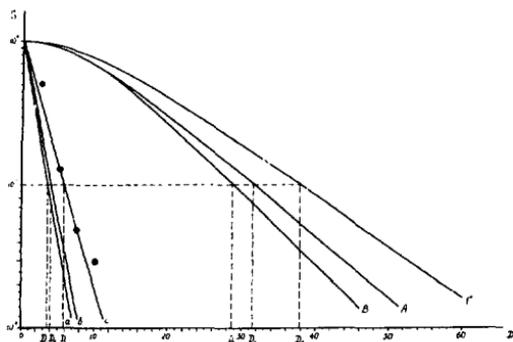


Рис. 8. Зависимость выживаемости (S) от поглощенной дозы в нормальных условиях оксигенации. а, А - клетки почки человека Т-Г; в, В - клетки Hella; с, С - клетки китайского хомяка; а, в, с - нейтроны с энергией 0,4 МэВ; А, В, С - протоны с энергией 10 МэВ; D - доза, МэВ/г · 10⁻⁹. ... - экспериментальные данные для клеток китайского хомяка /14/.

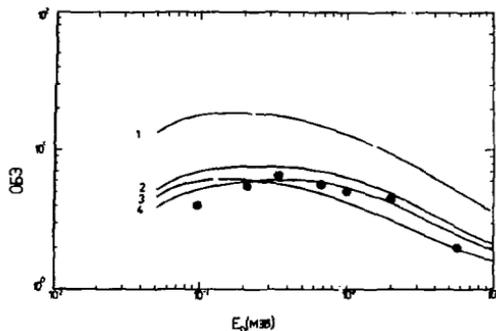


Рис. 9. Зависимость ОБЭ от энергии нейтронов. 1,2 - клетки почки человека Т-1; 3 - клетки китайского хомяка; 4 - клетки HeII а. 1 - в условиях аноксии, 2,3,4 - в условиях нормальной оксигенации. \circ - экспериментальные данные Холла ¹⁵. E - энергии нейтронов, МэВ.

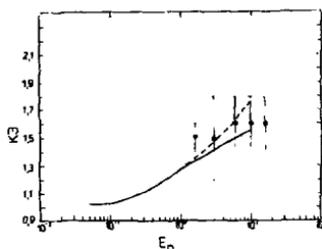


Рис. 10. Зависимость кислородного эффекта от энергии нейтронов для клеток Т-1. Сплошная кривая - расчет по параметрам таблицы 2, пунктирная кривая - расчет по следующим параметрам: $D_0 = 4,6 \cdot 10^4$, $m = 2,5$, $k = 1300$, $\sigma_0 = 6,7 \cdot 10^{-7}$; \bullet - экспериментальные точки для клеток китайского хомяка. E - энергии нейтронов, МэВ.

При получении зависимостей $S(D)$, рис.12, для нейтронов ИБР-30 спектр протонов $F(E)$ рассчитывался по уравнению:

$$F(E) = \int_E^{E_n^{\max}} \psi_p(E, E_n) \Phi(E_n) dE_n,$$

где $\Phi(E_n)$ - спектр нейтронов, см. рис.1.

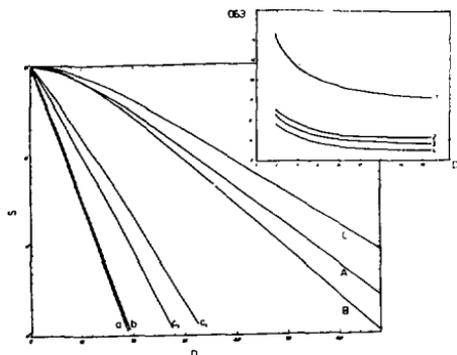


Рис. 11. Зависимость биологической эффективности (S) от поглощенной дозы для нейтронов ИБР-30. В зависимости $S(D)$ в нормальных условиях оксигенации: а - клетки Т-1, в - клетки He 11а, с₁ и с₂ - клетки китайского хомька для нейтронов со средними энергиями 0,7 МеВ и 3,0 МеВ соответственно; А, В, С - соответствующие кривые для 10 МеВ протонов. В зависимости ОБЭ (E_n): 1 и 2 - клетки Т-1, 3 - клетки He 11а, 4 - клетки китайского хомька. 1 - в условиях аноксии; 2, 3, 4 - в условиях нормальной оксигенации. D - доза, МеВ/г·10⁻⁹.

Выводы

Расчетанные по модели Катна радиобиологические характеристики $S(D)$, ОБЭ (E_n), $R_d(E_n)$ удовлетворительно согласуются с имеющимися в литературе экспериментальными данными для моноэнергетических нейтронов. Полученные в данной работе результаты по биологической клетках китайского хомька для сплошных спектров

нейтронов хорошо описывается расчетными кривыми выживаемости. Следовательно, модель Катца вполне пригодна для оценки радиобиологических характеристик лучков быстрых нейтронов. При планировании облучений в лучевой терапии быстрыми нейтронами по модели Катца можно получать пространственное распределение биологически эффективных доз (кривых изобозначения) /1, II, 12/.

Литература

1. Быстрые нейтроны в лучевой терапии опухолей, ВНИИМИ, Москва, 1976.
2. Hatanaka H., Sweet W. H. In: Proc. Symp. IAEA, Vienna, 1975, p. 147-174.
3. В.Д.Ананьев и др., ОИЯИ, I3-4395, Дубна, 1969.
4. Г.В.Макарова, В.М.Назаров. Тез. доклада II Всесоюзного симпозиума "Проблемы развития терапевтической радиационной техники", (Москва, 1974), М., 1975, стр. II7-II9.
5. Makra S., Larand P. In: Proc. Panel "Radiobiological Applications of Neutron Irradiation", (Vienna, 1971), IAEA, Vienna, 1972, p.41-50.
6. Bach R.L., Caswell R.S. Radiat. Res., 1968, v.35, p.1-25.
7. Katz R. e.a. Radiat. Res., 1971, v.47, p.402-425.
8. Armstrong T. W., Chandler K.C., Oak Ridge National Laboratory USA, Rep. ORNL - 4869.
9. Bach R.L., Caswell R.S. Radiat. Res., 1974, v.60, p.263.
10. Katz R., Sharma S.C. In: Proc. Forth Symp. on Microdosimetry, Verbania - Pallanza, Italy, 1973, p. 259-275.
11. Bohm J.K., Heha G. In: Proc. Symp. "Biomedical Dosimetry", (Vienna, 1975), IAEA, Vienna, 1975, p. 315-326.
12. Armstrong T.V., Chandler K.C. Radiat. Res., 1974, v. 58, p. 293-328.
13. Leenhouts H.P., Chadwick K.H. In: Proc. Symp. "Biological effects of Neutron Irradiation", (Neuherberg, 1973), IAEA, Vienna, 1974, p.152.
14. Hall E.J. e.a. Radiat. Res., 1975, v.64, p.245-255.

ПРИМЕНЕНИЕ ПРОТОННОГО ПУЧКА СИНХРОТРОНА ЛШФ
ДЛЯ ЛУЧЕВОЙ ТЕРАПИИ

Б.А.Коннов, Д.Л.Карлин, В.В.Низковолос

Центральный научно-исследовательский рентгено-
-радиологический институт, Ленинград

В период 1971-72 гг. исследовались основные физические и радиобиологические характеристики медицинского 1000-МэВ протонного пучка /1, 2, 5, 4/. Получен положительный опыт по лечению 53 больных (25 больных генерализованным раком молочной железы - облучение нормального аденогипофиза, 28 больных - облучение аденомы гипофиза), которые находились под наблюдением до 2,5 лет.

Высокая энергия используемого пучка протонов, а также необходимость обеспечения его чистоты (отсутствие примесей: заряженной, n и γ -компонент) и благоприятной радиационной обстановки заставили отказаться от традиционных методов формирования полей облучения протонами - установки формирующего и "чистового" коллиматоров перед облучаемым объектом. Формирование пучков для медико-биологических целей осуществляли с помощью дистанционно управляемого коллиматора, расположенного в главном зале ускорителя на расстоянии около 50 м от объекта облучения, и поворотного-фокусирующих электромагнитных элементов медицинского протонного тракта путем их последовательной настройки. Контроль положения пучка и постоянства распределения протонов производился с помощью двух пропорциональных многопроволочных камер, показания выводили на осциллограф и ЭВМ. Максимальный поток протонного пучка в зоне облучения составлял $5 \cdot 10^{10} \text{с}^{-1}$, что обеспечивало мощность дозы облучения до 50000 рад/мин для пучков \varnothing 3-5 мм. Энергетический разброс не превышал ± 12 МэВ. Угловая сходимость - $0,5^\circ$.

Для увеличения отношения дозы в очаге облучения к поверхностной дозе были применены 2 способа одновременно:

сфокусированный (сходящийся) прочный пучок и ротационное облучение. Сходимость пучка обеспечивалась фокусирующими электромагнитными элементами.

Ротационное облучение производилось путем плавного перемещения больного за счет одновременного или попеременного качаний лечебного стола и прибора-фиксатора головы (рис. 1). Центрация объекта на полюс ротации осуществлялась с помощью двух пар рентгено-диагностических аппаратов с электронно-оптическими преобразователями. Точность центрации $\pm 0,5$ мм.

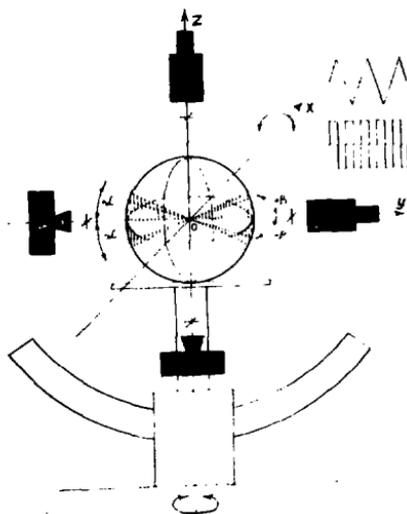


Рис. 1. Схема ротационного облучения и центрации.

Глубинные дозные поля, получаемые при такой методике, характеризуются резко обозначенным максимумом поглощенной дозы в центре конвергенции. Отношение доз в

центре к дозе на коже головы равно 200:1. Пучок на коже больного описывает различные траектории (рис. 2).

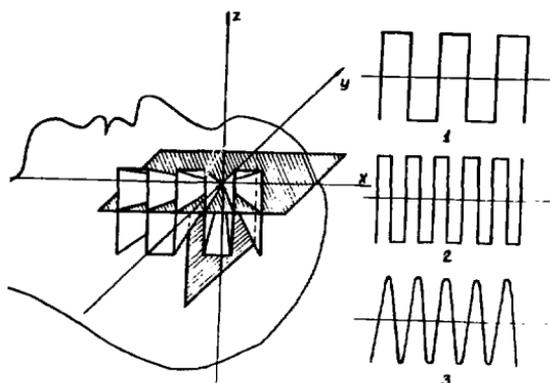


Рис. 2. Траектории пучка при конвергентном облучении.
1, 2 - при попеременном, 3 - при одновременном качании лечебного стола и прибора-фиксатора.

При облучении нормального гипофиза применялись пучки размером 4×7 мм. Использование заведомо узких пучков дает возможность повысить коэффициент эффективности. При облучении аденом гипофиза наиболее выгодно формировать дозные поля, состыковав 2 или более обычно полученных при двухосевой ротации дозных полей (рис. 3). Также поле предпочтительнее и с точки зрения градиента дозы (сохраняется градиент узкого пучка), и с точки зрения равномерности дозы в очаге облучения (увеличивается равномерность).

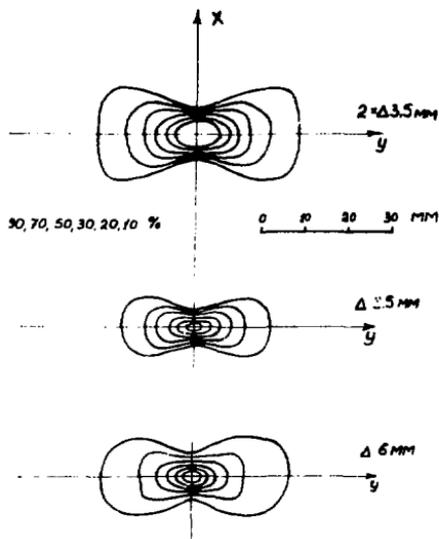


Рис. 3. Дозные поля, полученные при ротации от протонных пучков размером 6 мм; 3,5 мм и стыковкой двух полей от пучка 3,5 мм - 2х3,5 мм.

В настоящее время продолжительность укладки больного вместе с облучением составляет в среднем 40 мин.

На основе полученного опыта можно констатировать следующее. Ускорители тяжелых заряженных частиц, предназначенные для фундаментальных исследований, с применением специальной техники могут быть с успехом использованы для целей медицины. На синхротроне ЛИЯФ пропускная способность может быть доведена до 70-80 больных в год.

Литература

1. Д.Л.Карлин и др. *ж. Мед.радиология*, 7,13 /1975/.
2. В.В.Низковолос и др. *ж. Мед.радиология*, 7,19 /1975/.
3. Б.А.Коннов и др. *ж. Мед.радиология*, 7,33 /1977/.
4. Б.А.Коннов и др. *ж. Мед.радиология*, 12,3 /1977/.

КОРОТКОЖИВУЩИЕ НУКЛИДЫ ДЛЯ МЕДИЦИНСКИХ ЦЕЛЕЙ

В.А.Халкин

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

В современной ядерной медицине для научно-исследовательских, диагностических и терапевтических целей применяется более сорока радиоактивных нуклидов с периодами полураспада от нескольких минут до нескольких лет. При выборе тех из них, которые предназначены для введения в пациента, предпочтение отдается, при прочих равных условиях, наиболее короткоживущим нуклидам. Такая тенденция продиктована дозиметрическими соображениями, стремлением не повредить пациенту в процессе обследования и лечения. Принято считать, что в идеальном случае среднее время жизни радиоактивного изотопа элемента должно быть одного порядка величины со временем, необходимым для проведения измерений после введения радио-препарата. Но такие совпадения скорее исключение, чем правило, и на практике в ряде случаев приходится применять относительно долгоживущие радионуклиды, что обусловлено их удобной для регистрации схемой распада. Даже если длительность задержки в организме радиофармацевтического препарата, содержащего долгоживущий изотоп элемента, не велика, и пациенту не грозят повышенные радиационные нагрузки, то сам пациент представляет определенную опасность, становясь источником возможных радиоактивных загрязнений окружающей среды. Стремлением уменьшить эти отрицательные факторы и диктуются поиски новых методов ядерной медицины с использованием короткоживущих нуклидов. Прогресс в данной области тесно связан с созданием и широким использованием в клинической практике эффективных электронных приборов, быстро и точно воссоздающих картину распределения активности в организме. Количество и качество измерительной техники, в конечном итоге, определяет ассортимент и количество короткоживущих нуклидов, необходимых для медицинских целей.

Очевидно, что понятие "короткоживущий нуклид" весьма относительно. Но если ограничить верхние пределы периодов полураспада десятью днями, то в этой группе окажется основная часть применя-

емых или перспективных для ядерной медицины нуклидов. Это изотопы, в большинстве своем нейтронодефицитные, примерно тридцать элементов от углерода и азота до висмута и астата ^{1/1}. Производство многих из них базируется на ускорителях заряженных частиц: компактные и, реже, изохронные сильноточные циклотроны с энергией ионов от 10 до 70 МэВ на нуклон. Организация производства на протонных ускорителях более высоких энергий – порядка нескольких сотен МэВ – считалась нецелесообразной по ряду соображений, а именно:

- очень высокая стоимость строительства и эксплуатации машины;
- низкие токи протонов высоких энергий и малые сечения ядерных реакций с их участием, что приводит к образованию небольших количеств нужных радионуклидов;
- сложная смесь радиоэлементов в облученной мишени и, следовательно, очень трудоемкие радиохимические методики, необходимые для их выделения, очистки и концентрирования.

Однако создание мезонных фабрик – сильноточных протонных ускорителей изменило сложившуюся точку зрения. В настоящее время кажется очевидным, что использование мезонных фабрик открывает дополнительные возможности для расширения производства некоторых нейтронодефицитных нуклидов. Поэтому на всех действующих машинах такого типа предполагается организация производства радионуклидов, нужных ядерной медицине.

Сильноточные протонные ускорители предназначены, главным образом, для решения экспериментальных задач ядерной физики. Ускоренные до энергий 600±100 МэВ протоны проходят через ряд различных мишеней, на которых рождаются вторичные частицы, в результате чего немного снижается энергия протонов и их интенсивность и происходит небольшая дефокусировка протонного пучка. Протоны, выполнившие свою задачу, "сбрасываются" в специальное устройство – ловушку пучка, перед которой можно облучать мишени, предназначенные для изготовления радионуклидов. Так как стоимость протонного пучка в данном случае исключается из расходов на производство радиоактивных нуклидов, последние должны иметь невысокую себестоимость.

Благодаря малым ионизационным потерям протонов высоких энергий в веществе (1-1,5 МэВ/г/см²), можно эффективно облучать мишени толщиной в десятые доли грамм-атома на см² и тем самым компенсировать малые сечения образования спалогенных нуклидов. Термин "спалогенные" относится к продуктам основных реакций про-

тонов с энергией меньше 1 ГэВ с ядрами среднего атомного веса. Эти реакции в английском языке носят название "spallation" (дробление, спалливание), откуда и происходит их русский эквивалент обозначения: "глубокое расщепление".

Максимальные сечения образования в ядерных реакциях глубокого расщепления имеют нуклиды, близкие к исходному ядру-мишени, с дефицитом массы 20 единиц и меньше. Спалогенные элементы, в принципе, не могут быть получены моноизотопными, они содержат многокомпонентную смесь как нейтроноизбыточных, так и нейтронодефицитных изотопов и в большой степени обогащены последними. Поэтому, если предъявляются жесткие требования к радиоизотопной чистоте, то ядерные реакции глубокого расщепления пригодны для получения лишь ограниченного числа нуклидов, которые удается выделить с минимальной примесью других изотопов, либо благодаря их ядерным свойствам, либо свойствам ядер-предшественников.

Расчеты показывают, что при бомбардировке протонами высоких энергий массивных мишеней толщиной в десятые доли грамм-атома на см², выход некоторых нейтронодефицитных нуклидов выше, чем из "толстых" циклотронных мишеней (Таблица 1). Но отделение спалогенных элементов от большого количества материала мишени, их разделение и глубокая очистка — задачи несравненно более трудные, чем те, которые приходится решать при переработке мишеней, облученных частицами низких энергий. Опыт, накопленный радиохимиками, в частности в Лаборатории ядерных проблем в Дубне, позволяет найти принципиальные решения, ведущие к созданию эффективных методов получения препаратов многих нейтронодефицитных нуклидов, необходимых ядерной медицине. Развитие этого направления прикладной радиохимии в Объединенном институте ядерных исследований связано с проходящей сейчас реконструкцией синхротронного ускорителя ядерных проблем в сверхточном фазотроне — установке "Ф", на которой планируется поднять интенсивность выведенного протонного пучка до 10–15 мкА. Такая интенсивность позволит в отдельных случаях нарабатывать десятки милликури ценных нуклидов за час облучения мишени. В тех случаях, когда из-за технических трудностей будет нецелесообразно облучать массивные внешние мишени многократного использования, небольшие мишени из тугоплавких металлов будут вводиться на пробнике внутрь вакуумной камеры ускорителя для облучений сфокусированным внутренним пучком протонов.

Таблица I

Сравнительные выходы некоторых радионуклидов при облучении мишеней частицами
высоких и низких энергий (мкКи/мкА-час)

Нуклид	$T_{1/2}$, ч	$E_p = 600$ МэВ		$E_p = E_d = 22$ МэВ, $E_\alpha = 44$ МэВ		
		Мишень 0,25 г-ат/см ²	Сечение мб /2/	Выход	"Толстая" мишень	Выход /3/
²² Na	$2,3 \cdot 10^4$	Si	20	15	Mg+d	3,4
⁵¹ Cr	675	Fe	50	1300	V+p	520
⁶⁷ Ga	78	As	15	3200	Zn+p	500
⁷² Se	200	Nb	5	420	Ge+α	33
⁸⁷ Y	80	Mo	50	10^4	Sr+p	$1,75 \cdot 10^3$
¹⁹⁵ Au	$4,3 \cdot 10^3$	Bi	40	160	Pt+d	6
²⁰³ Pb	52	Bi	60	$2 \cdot 10^4$	Tl+d	410

Первым радиоуклидом, производство которого, очевидно, целесообразно на установке "Ф", является мод-123. Среди многочисленных изотопов йода ^{123}J более других подходит для так называемых исследований *in vivo* ^{4,5}. Относительно короткий период полураспада ($T_{1/2} = 13,3$ ч), отсутствие β^- -излучения, удобная для регистрации энергия γ -квантов - 159 кэВ (86%) делают этот изотоп йода почти идеальным для многих диагностических задач. Радиационная доза, которую получает пациент от введенного в его организм ^{123}J , в сто раз меньше, чем при введении таких же по активности препаратов ^{131}J или ^{125}J . Из смеси спалогенных продуктов йод-123 может быть выделен генераторным методом, через ^{123}Xe ($T_{1/2} = 2,1$ ч). Элементами-мишенями для получения ^{123}Xe могут служить цезий, барий или лантан, из растворов или расплавов которых радиоксенон выделяется и собирается в процессе облучения ^{12,6}. По нашим данным, при сборе в течение 4-5 часов радиоксенона, выделяющегося в процессе облучения из мишени CsCl , и последующем накоплении радиоиода в течение 2-3 часов в полученном препарате ^{123}J через 12 часов после отделения ксенона от дочерних изотопов йода, примеси ^{125}J ($T_{1/2} = 60$ дней) и ^{121}J ($T_{1/2} = 2$ часа) составляют (по активности) около 0,6% и 5%, соответственно. Такой препарат, по заключению специалистов из Отделения ядерной медицины Медицинской академии Карл-Густав Карус (Дрезден ГДР), годен для различных радиодиагностических целей. Препараты ^{123}J такой чистоты могут получаться с выходом около 15 мКи/мкл-час из мишени CsCl толщиной 0,3 г-ат/см². При приготовлении ^{123}J в качестве побочного продукта накапливается смесь долгоживущих нейтронодефицитных изотопов ксенона: ^{122}Xe ($T_{1/2} = 20,1$ часа), ^{125}Xe ($T_{1/2} = 16,8$ часа) и ^{127}Xe ($T_{1/2} = 36,4$ дня), которая может быть полезна при исследовании легких и кровотока в тканях ¹¹.

Техника получения йода-123, если материал мишени заменить, например, на хлорид рубидия, может без каких-либо дополнений и изменений использоваться для выделения ^{77}Br ($T_{1/2} = 56$ час) генераторным методом через ^{77}Kr ($T_{1/2} = 1,24$ часа). Этот нейтронодефицитный, наиболее долгоживущий изотоп брома может найти в ядерной медицине столь же широкое применение, как и радиоид ¹⁷.

Генераторный метод позволяет также получать моноизотопные препараты астата-211 ($T_{1/2} = 7,3$ часа) через ^{211}Rn ($T_{1/2} = 14,6$ ч). В настоящее время медико-биологические исследования с астатом, по-видимому, наиболее интенсивно проводятся в Брукхейвенской на-

циональной лаборатории в США. В частности, предмет интересов радиологов – меченные астатом биомолекулы; медики используют астат для изучения выживаемости клетки под действием альфа-излучения. На установке "Ф", по нашим экспериментальным оценкам, мы сможем получать при облучении торийсодержащей мишени 20–30 мКи ^{211}At в час.

Генераторный метод получения препаратов нейтрондефицитных изотопов галогенов – пример наиболее эффективного использования многоразовых мишеней большой массы с непрерывным отбором заданных продуктов ядерных реакций в процессе облучения. В данном случае совершенно очевидны преимущества реакций расщепления для получения нейтрондефицитных изотопов благородных газов и галогенов, по сравнению с ядерными реакциями при низких энергиях бомбардируемых частиц. Именно поэтому нам представляется целесообразным первоочередное развитие этой методики применительно к тем возможностям, которые появятся для производства радионуклидов после запуска установки "Ф".

В ядерной медицине для исследований состояния скелета и определения местоположения опухолей в мягких тканях ^{111}In нашли применение радиоизотопы ряда металлов, в том числе и редкоземельных. Для этих целей, вероятно, очень перспективен нейтрондефицитный изотоп тяжелого лантанида тулия – ^{167}Tm ($T_{1/2} = 9,25$ дне). Распад нуклида сопровождается испусканием γ -квантов с энергией, в основном, 208 кэВ (42%). Выход ^{167}Tm при облучении тантала протонами с энергией 660 МэВ, по нашим определениям, составляет 15–20 мКи/мкА-час.г/см². Через 10 суток после облучения радиотулий содержит больше 95% ^{167}Tm и менее 0,1% и 4% примесей ^{168}Tm ($T_{1/2} = 93$ д) и ^{165}Tm ($T_{1/2} = 30$ ч), соответственно. Министерство здравоохранения ГДР дало разрешение на применение приготовленного в Дубне ^{167}Tm с таким уровнем изотопных примесей в клинике. В медицинской академии г. Дрездена препарат был введен пациентам и получены положительные, с точки зрения диагностики, результаты. По нашим оценкам, на установке "Ф" можно будет производить до 20 мКи/час ^{167}Tm при облучении танталовых или гафниевых металлических мишеней толщиной 40–50 г/см². Учитывая большую массу мишени, ценность материалов, из которых они изготовлены, и очень высокую наведенную активность, единственно приемлемый путь выделения тулия или его предшественника иттербия – это высокотемпературное испарение лантанидов в вакууме без разрушения мишени 18 . Такой

процесс, в принципе, возможен. Но создание мишени многоэлемента использования массой около двух килограмм и устройств, обеспечивающих её нагрев до 2000°C в глубоком вакууме, - очень сложная задача, над решением которой предстоит много поработать. Поэтому, если для клинических испытаний потребуются относительно большие количества ^{167}Tm до разработки мишени многоэлемента использования, его можно будет получать на внутреннем протонном пучке установки "Ф". Ожидаемый выход ^{167}Tm 7-8 мкг/час. Очевидно, что в данном случае себестоимость нуклида будет высокой. Но, вероятно, его производство будет оправданным, так как на ускорителях низкой энергии, при наиболее благоприятных условиях, выход нуклида на порядок ниже /1, стр. 212/.

Кроме ^{167}Tm на установке "Ф", в случае необходимости, могут получаться нашедшие применение в онкологии для определения местоположения некоторых глубоко залегающих опухолей ^{67}Ga и ^{111}In .

Как показали расчеты сечений образования изотопов этих элементов, выполненные по известным формулам /9/, ^{67}Ga и ^{111}In могут быть выделены из суммы продуктов реакций глубокого расщепления с небольшими изотопными примесями. Оцененная на основании рассчитанных сечений скорость накопления ^{67}Ga в мишени RbVz 0,1-0,2 мкг/мкА-час.г/см². Возможное изотопное загрязнение ^{66}Ga ($T_{1/2} = 9,3$ ч) через 3 суток после облучения должно быть менее 2%. При облучении сурьмы скорость накопления ^{111}In оценивается около 0,5 мкг/мкА-час.г/см². Возможные изотопные загрязнения ^{109}In ($T_{1/2} = 4,2$ ч) и $^{110\text{m}}\text{In}$ ($T_{1/2} = 4,9$ ч) через двое суток после выделения индия упадут до 1%. Оба элемента, очевидно, можно будет выделять без разрушения мишеней и очищать методом газовой термохроматографии. Этот метод уже успешно использовался в Лаборатории ядерных проблем для ряда спалогенных элементов.

Рассматривая перспективы применения протонов высоких энергий для получения короткоживущих радионуклидов, вероятно, следует обратить внимание на возможности приготовления воды и воздуха, меченных радиоактивными изотопами таких биологически важных элементов, как кислород (^{15}O , $T_{1/2} = 2$ мин), азот (^{13}N , $T_{1/2} = 10$ мин) и углерод (^{11}C , $T_{1/2} = 20,4$ мин). Для протонов с энергией 600-700 МэВ сечения реакций ($p, p n$) на ^{14}N и ^{16}O 4-5 мб и 30-40 мб, соответственно /10/. Следовательно, скорость накопления ^{15}O и ^{13}N в воздухе будет около 0,15 и 0,02 мкг/мкА.с.мл, соответственно, а ^{15}O в воде ~ 1 мкг/мкА.с.мл. При этом необхо-

димо учитывать, что ^{15}O , ^{13}N и ^{11}C можно непрерывно получать в течение всего эксперимента, облучая проточные газовые или жидкостные мишени, что существенно облегчает и ускоряет медико-биологические исследования с этими короткоживущими нуклидами.

Рассмотренные выше нейтрондефицитные изотопы некоторых элементов, конечно, не исчерпывают список спалогенных нуклидов, перспективных для медицинских целей, которые можно будет получать на установке "Ф". Расширение его, в конечном итоге, зависит от заинтересованности медиков в применении тех или иных нейтрондефицитных радионуклидов в исследованиях и клинической практике. Поэтому задачи получения нуклидов для медицинских целей в ОИЯИ должны ставиться и решаться совместно медиками, радиохимиками и физиками. Примером такого сотрудничества является отмечавшаяся в докладе совместная работа Научно-экспериментального отдела ядерной спектроскопии и радиохимии (ЛЯП ОИЯИ), Отдела изотопов (Росендорф ГДР) и Отделения ядерной медицины Медицинской академии (Дрезден ГДР), успешно развивавшаяся благодаря плодотворным контактам с нашими немецкими коллегами: профессором Р.Мьнце, докторами Г.-Ю.Байером и В.Франке, а также активной поддержке директора Лаборатории ядерных проблем профессора В.П.Джелепова и его заместителя профессора К.Я.Громова.

Литература

1. Silvester D.J. In: Proc. of Symposium Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds, Copenhagen (1973), Vol. 1, p.197.
2. O'Brien H.A. et al. In: Accelerator-Produced Radioisotope Program, Quart.Rep. LA-5120-PR, Los Alamos (1972) p.8.
3. Краснов Н.Н. и др. В сб.: Производство изотопов. М., Атомиздат, 1973, стр.110.
4. Proceedings of a Conference on Applications of Iodine-123 in Nuclear Medicine, Rockwill, Maryland, USA, 1975. HEW Publication (FDA) 76-8033.
5. Proceedings of Panel Discussion Iodine-123 in Western Europe KFA Julich (1976) Jul-Conf.-20.
6. Алексеев Е.Г. и др. ЛИИФ-382, Ленинград 1978.
7. Stocklin G., Int. J. Appl.Radiat. Isotopes, 1977, 28, p.131.
8. Байер Г.-Ю. и др. ОИЯИ, Р6-8917, Дубна, 1976.
9. Лаврухина А.К., Кузнецова Р.И. ОИЯИ, 6-3699, Дубна, 1968.
10. Перфилов Н.А., Ложкин О.В., Остроумов В.И. Ядерные реакции под действием частиц высоких энергий. Изд АН СССР, М.-Л., 1962, стр.185.

ПОЛУЧЕНИЕ ИЗОТОПА ^{123}I В РЕАКЦИЯХ РАСЩЕПЛЕНИЯ
ПРИ ЭНЕРГИИ ПРОТОНОВ 1 ГэВ И СИНТЕЗ МЕЧЕННЫХ
 ^{123}I РАДИОФАРМАЦЕВТИЧЕСКИХ ПРЕПАРАТОВ NaI .

Е.Г.Алексеев, В.М.Зайцев, А.М.Золотов, В.И.Тихонов

Ленинградский институт ядерной физики
им. Б.П.Константинова АН СССР

В последнее время использование изотопа йод-123 как "идеального" радионуклида для целей медицинской диагностики привлекает к себе большое внимание во многих странах¹⁻⁶. Йод-123 может быть получен на ускорителях заряженных частиц или как прямой продукт ядерных реакций, или косвенным методом после выщелачивания предшественника - ^{123}Xe (2,1 часа). Второй метод получения позволяет получать целевой продукт с более высокой радионуклидной чистотой.

В настоящей работе описан практический способ получения изотопа ^{123}I без носителя с использованием реакций расщепления при энергии протонов 1 ГэВ и синтез йодида натрия с йодом-123 без носителя для функциональной диагностики заболеваний щитовидной железы. Как было нами показано ранее⁷, максимальные кумулятивные выходы ^{123}Xe при энергии протонов 1 ГэВ достигаются при использовании в качестве мишени для облучения ядер цезия. Для получения ^{123}Xe (^{123}I) использован концентрированный водный раствор хлористого цезия, который помещается в герметичный тонкостенный цилиндр из нержавеющей стали, снабженный устройством для продувания через раствор во время облучения гелия. Плотность мишени в расчете на цезий составляет около 40 г.см⁻². Облучение мишени проводится в выведенном пучке протонов с энергией 1 ГэВ синхроциклотрона Ленинградского института ядерной физики им. Б.П.Константинова АН СССР (1,5 - 2·10¹² част.·с⁻¹, 2-3 часа). Образующиеся изотопы ксенона непосредственно из-под пучка транспортируются по поднятительному шлангу длиной около 100 м током гелия (~ 200 см³.мин⁻¹) в радиохимическую лабораторию и поглощаются в эффективной ловушке небольшого объема с активированной Al_2O_3 . Перед поглощением в ло-

вудке изотопы ксенона очищаются путем пропускания их через концентрированную серную кислоту и антидрон.

На рис. I изображена ловушка для извлечения изотопов ксенона

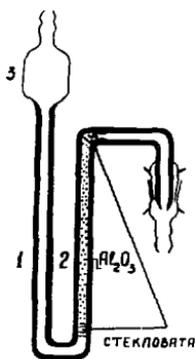


Рис. I Ловушка для поглощения ^{123}Xe

без носителей из тока гелия. Ловушка выполнена из термостойкого стекла, колено 2 длиной 70 мм и внутренним диаметром 4 мм заполняется окисью алюминия, а колено I оставляется свободным с целью дополнительной очистки ^{123}Xe при прохождении его через этот участок от паров воды при охлаждении до -196°C . Части I и 2 ловушки погружаются в сосуд Дьюара с жидким азотом, и ^{123}Xe практически полностью сорбируется в ловушке. После окончания облучения ловушка с ^{123}Xe выдерживается при -196°C в течение 6-7 часов для распада ^{123}Xe , затем током гелия из ловушки производится удаление изотопов ксенона (в основном, ^{125}Xe) и ловушка вновь выдерживается в течение нескольких часов для распада основного

количества короткоживущих изотопов йода - ^{121}I (2,1 часа) и ^{120}I (1,3 часа). Затем в объем 3 помещается разбавленный раствор NaOH (pH ~ 8,0) и производится пропускание раствора через ловушку. При этом элюат содержит ^{123}I в виде йодид-иона и является целевым продуктом. Важным является то обстоятельство, что в этом процессе получения раствора Na^{123}I происходит его очистка от радиохимических загрязнений (окисленных форм йода - IO_4^- и IO_3^- - ионов) и радиоактивных изотопов теллура - ^{121}Te и ^{119}Te , которые задерживаются на окиси алюминия.

Перед использованием Al_2O_3 обрабатывается раствором NaOH следующим образом: через ловушку, заполненную Al_2O_3 , пропускается раствор NaOH (pH=10,0) до тех пор, пока на выходе раствор не будет иметь то же самое значение pH=10,0. Далее Al_2O_3 подсушивается путем пропускания через ловушку тока инертного газа при 20°C .

Необходимость предварительной обработки Al_2O_3 обусловлена тем фактором, что с необработанной Al_2O_3 элюируется только 30-40%

^{123}I . Это связано с тем, что при распаде ^{123}Xe на поверхности необработанной Al_2O_3 большая часть атомов ^{123}I стабилизируется в окисленных химических формах, не извлекающихся элементом. После обработки Al_2O_3 из нее извлекается уже более 90% всего ^{123}I .

Разработанный практический метод получения препаратов Na^{123}I позволяет полностью улавливать ^{123}Xe без носителя, а также совмещает операции получения препаратов Na^{123}I с их очисткой от радиохимических и радиоизотопных примесей. Характеристики препарата: радиохимическая чистота (содержание йодид-иона) более 95%, рН ~ 8,0-9,0, удельная активность 0,5-1,0 мКи, мл⁻¹, радионуклидная чистота на момент паспортизации на уровне 97-98% (примеси: ~1,5-2,5% ^{121}I , ~0,5% ^{125}I).

Для использованной в экспериментах мишени выход изотопа составляет около 20 мКи, мКа⁻¹, ч⁻¹.

Экспериментальное медицинское исследование препарата Na^{123}I в сопоставительном плане с Na^{131}I подтвердило его высокие характеристики и практическое отсутствие повреждающего действия ^{123}I (до 0,1 мКи) на цитовидную железу при высокой йодпоглощительной способности последней к данному препарату^{/8/}.

Литература

1. W. Meyers, H. Anger, J. Lamb, H. Wingham, Proc. Symp. New Devel. Radiopharm. Labelled Comp., Copenhagen, vol. 1, 249, IAEA, Vienna (1973).
2. M. Loberg, M. Phelps, M. Welch, J. Nucl. Med., 14, 733 (1973).
3. R. Weinreich, S. Qain, H. Michael, G. Stöcklin, J. Radianal. Chem., 30, 53 (1976).
4. J. Cuninghame, B. Morris, A. Nichols, N. Taylor, Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 27, 597 (1976).
5. L. Lindner, J. Bijl, F. Kasprgen, A. Schimmel, Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 27, 653 (1976).
6. K. Kondo, R. Lambrecht, A. Wolf, Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 28, 395 (1977).
7. Е. Г. Алексеев, В. М. Заяцев, А. М. Золотов, препринт ЛИЯФ АН СССР, №191 (1975).
8. Е. И. Комаров, А. А. Волков, Е. Г. Алексеев, В. М. Заяцев, Л. А. Кашенко, Е. А. Лялин, С. Н. Колбаева, Л. С. Ундалова, Медицинская радиология, 33, 28 (1978)

ПОЛУЧЕНИЕ ТЕРБИЯ-155 И ТУЛИЯ-167 НА УСКОРИТЕЛЕ ЛУЭ-25
Е.А.Вайнер, Н.П.Громова, А.Ф.Гуськов, Н.В.Куренков,
В.И.Левин, А.Б.Малинин, И.Н.Тронова, В.Г.Хрущев

Институт биофизики МЗ СССР, Москва

В настоящее время большинство радионуклидов медицинского назначения производят на реакторах и циклотронах. Для этой цели можно использовать и ускорители электронов (УЭ). В последнем случае имеется ряд преимуществ. По фотоядерным реакциям можно получать как нейтронсизбыточные, так и нейтронодефицитные радионуклиды. В отличие от циклотронных мишеней образцы при облучении тормозным излучением той же мощности нагреваются значительно слабее, что упрощает проблему приготовления мишеней, а меньшие величины сечений компенсируются большими количествами облучаемого вещества. Во многих случаях при использовании фотоядерных реакций можно достигнуть более высокой радионуклидной чистоты радиофармацевтических препаратов, чем при использовании реакций с заряженными частицами.

Впервые на возможность получения радионуклидов на УЭ указано в работе Мак-Грегора^{/1/}. Однако практические разработки появились позднее^{/2-6/}. В нашей лаборатории разработаны методы получения ряда радионуклидов, применяемых в медицине, по фотоядерным реакциям. Из них в данной работе представлены методы получения радионуклидов ^{155}Tb и ^{167}Tm без носителя на линейном ускорителе электронов с энергией до 25 МэВ (ЛУЭ-25).

Радионуклиды редкоземельных элементов было предложено применять для исследования функций почек, диагностирования костной патологии и для визуализации злокачественных новообразований^{/7-9/}. В частности, для скенирования скелета рекомендован $^{167}\text{Tm}/^{10}/$. По нашим данным, лучшими свойствами для этой цели обладает $^{155}\text{Tb}/^{11}/$.

Для получения ^{155}Tb и ^{167}Tm на циклотроне использовали реакции $^{153}\text{Eu}(\alpha, 2n)^{155}\text{Tb}$ и $^{165}\text{Ho}(\alpha, 2n)^{167}\text{Tm}/^{11}/$. При этом смесь ^{168}Tm в препарате ^{167}Tm составляет 0,7%, а в препарате ^{155}Tb присутствует примесь ^{153}Tb - 30% и ^{156}Tb - 4%. Такие препараты ^{155}Tb непригодны для ядерной медицины.

Препараты ^{155}Tb и ^{167}Tm , значительно более чистые, мы получали по фотоядерным реакциям $^{156}\text{Dy}(\gamma, n)^{155}\text{Dy}(ЗЗ)$ ^{155}Tb и $^{168}\text{Yb}(\gamma, n)^{167}\text{Yb}(ЗЗ)$ ^{167}Tm на изотопнообогащенных мишенях. Для расчета выходов радионуклидов использовали допущение о применимости теории о среднем при интегрировании произведения сечения и плотности потока фотонов при условии аппроксимации плотности потока линейной зависимостью и полного охвата резонансной кривой сечения реакции спектром тормозного излучения. Тогда активность радионуклида (а) выражается через интегральное сечение ($\sigma_{\text{инт.}}$), рассчитываемое по обычной формуле $\sigma_{\text{инт.}} = 0,021 \cdot A^{1/2}$, где А - атомный вес ядер мишени, и плотность потока фотонов в интервале I МэВ (γ) при энергии максимума гигантского резонанса ($E_{\text{макс.}}$):

$$a = n \int_{E_{\text{пор}}}^{E_0} \gamma(E) \sigma(E) dE = n \gamma(E_{\text{макс.}}) \sigma_{\text{инт.}}$$

где n - плотность ядер-мишеней, E_0 - максимальная энергия тормозного спектра.

В таблице I представлены величины соответствующих параметров, использованных для расчета, и выходы продуктов реакции (γ, n) для тонких мишеней.

Таблица I
Расчетные выходы продуктов реакции (γ, n) при 25 МэВ и величины соответствующих параметров

Ядро-мишень	Изотопное содержание, %	Ядро-продержание, дукт	$T_{1/2}$, час	$E_{\text{пор}}$, МэВ	$E_{\text{макс.}}$, МэВ	$\sigma_{\text{инт.}}$, МэВ.б	Выход ^{*)} , МКК/час.г
^{156}Dy	17,5	^{155}Dy	9,6	9,9	14,8	3,2	66,7
^{168}Yb	25	^{167}Yb	17,7	8,99	14,6	3,4	51,6

^{*)} Выходы указаны на момент окончания облучения.

В эксперименте обогащенные образцы Yb_2O_3 весом 20-200 мг и Dy_2O_3 весом 100-1000 мг помещали в алюминиевые контейнеры диаметром 15-25 мм, которые располагали непосредственно за вольфрамовой мишенью-конвертором, и облучали пучком тормозного излучения. Контроль и настройку пучка электронов по энергии и току производили соответственно с помощью магнитного анализатора и цилиндра Фарадея. Положение пучка проверяли с помощью пленочных цветковых индикаторов.

торов. Энергия пучка электронов составляла 23–25 МэВ, ток пучка – до 10 мкА, длительность облучения – до 20 час.

После облучения образцы выдерживали определенное время ($t_{\text{опт}}$) для распада промежуточных нуклидов в конечные ядра и максимального накопления последних, измеряли активность радионуклидов с помощью сцинтилляционного γ -спектрометра, а затем подвергали химической переработке с целью выделения ^{155}Tb и ^{167}Tm без носителя. Сопоставление расчетных и экспериментальных величин активностей конечных радионукли-

дов представлены в таблице 2. Экспериментальные величины являются средними из 4 опытов для ^{167}Tm и 6 опытов для ^{155}Tb .

Для отделения микроколичеств гербия и тулия соответственно от макроколичеств диспрозия и иттербия мы использовали метод

экстракционной хроматографии. Экстрагентом служила ди(2-этилгексил)ортофосфорная кислота, нанесенная тонкой пленкой на гидрофобизированный силикагель. В качестве элюентов использовали азотную ($^{155}\text{Tb-Dy}$) и азотную и соляную ($^{167}\text{Tm-Yb}$) кислоты. Облученную окись диспрозия растворяли в концентрированной соляной кислоте, раствор упаривали досуха, а остаток растворяли в 1,2-н растворе азотной кислоты. Затем раствор переносили на колонку, контролируя элюат на содержание ^{155}Tb и Dy. По мере прохождения раствора через колонку пропускали дополнительные порции 1,2-н раствора азотной кислоты для вымывания ^{155}Tb . Фракции, содержащие ^{155}Tb , объединяли, упаривали досуха и остаток растворяли в 5–10 мл 0,2-н раствора соляной кислоты. Обогащенный диспрозий, оставшийся на колонке, смывали 3-н раствором соляной кислоты и превращали в окись для последующего облучения. Выход ^{155}Tb составлял около 90%. В препарате ^{155}Tb обнаружены $^{157}\text{Tb} < 10^{-2}\%$ и $^{155,157}\text{Dy} < 10^{-2}\%$, а также неактивные примеси Dy < 5 мкг/мл, Fe < 10 мкг/мл и других элементов в сумме < 10 мкг/мл.

Таблица 2
Сопоставление расчетных и экспериментальных выходов конечных радионуклидов

Радионуклид	$T_{1/2}$, сутки	$t_{\text{опт}}$, час	Выход ^{*)} , расчет,	Выход ^{*)} , эксперим.,
			мкКи	мкКи
			МКА.час.г	МКА.час.г
^{155}Tb	5,6	39,3	3,50	$3,0 \pm 0,6$
^{167}Tm	9,6	70,6	2,85	$2,4 \pm 0,7$

*) Выходы приведены на момент оптимальной выдержки облученных образцов.

Аналогичным образом мы выделяли ^{167}Tm , пропуская раствор облученной окиси иттербия в 4,3-н азотной кислоте через колонку. Первые фракции элемента (4,3-н раствор азотной кислоты) содержали ^{167}Tm . Обогащенный иттербий смывали затем 6-н раствором азотной кислоты и регенерировали до окиси. Выход ^{167}Tm составлял не менее 80%. Из радиоактивных примесей присутствовали $^{168,170,172}\text{Tm}$ $< 10^{-3}\%$ и $^{169,175}\text{Yb}$ $< 10^{-2}\%$. Содержание неактивных примесей: Yb < 5 мкг/мл, Fe < 10 мкг/мл, другие элементы в сумме < 10 мкг/мл. Активности готовых препаратов, получаемых нами на ЛУЗ-25, составляли для ^{155}Tb до 0,5 мКи, для ^{167}Tm - до 0,1 мКи.

Приведенные данные показывают, что препараты ^{155}Tb и ^{167}Tm , получаемые с использованием УЭ, характеризуются существенно более высокой радионуклидной чистотой, чем циклотронные (особенно в случае ^{155}Tb), и могут с успехом применяться для приготовления радиофармацевтических препаратов для ядерной медицины.

Отметим также, что производительность некоторых действующих в СССР электронных ускорителей при выработке радионуклидов будет сравнима с производительностью сильноточных циклотронов.

Литература

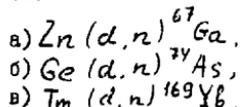
1. M.N. Mc Gregor, *Nucleonics*, 15, 176 /1957/.
2. А.Б.Малинин и др. *Радиохимия*, 12, 780 /1970/.
3. N.Marceau et al. *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, 21, 667 /1970/.
4. T.Kato et al. *Talanta*, 19, 515 /1972/.
5. M.Yagi et al. *Chem. Letters*, 3, 215 /1972/.
6. F.C.Gray et al. *J. Nucl. Med.*, 14, 931 /1973/.
7. R.E.O'Mara et al. *ibid.*, 9, 340 /1968/.
8. K.Hisada et al. *ibid.*, 14, 615 /1973/.
9. И.Н.Тронова и др. *Мед. радиология*, 8, 31 /1973/.
10. B.Chandra et al. *Radiology*, 100, 687 /1971/.
11. В.М.Левин и др. *Радиохимия*, 19, 388 /1977/.
12. Н.А.Власов. *Нейтроны. "Наука"*, /1971/.

ПОЛУЧЕНИЕ И ВЫДЕЛЕНИЕ НЕКОТОРЫХ ЦИКЛОТРОННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ
ИЗОТОПОВ, ИСПОЛЪЗУЕМЫХ В ЯДЕРНОЙ МЕДИЦИНЕ

И. Никульски, Т. Петрына

Институт ядерной физики, Краков, ПНР

Галлий-67, иттербий-169, а также мышьяк-74 используются в ядерной медицине при клинических исследованиях злокачественных опухолей (^{67}Ga и ^{169}Yb) и метаболизма неорганических ядов (^{74}As). Для обеспечения требований ядерной медицины в Лаборатории ядерной физико-химии Института ядерной физики (Краков, ПНР) разработаны быстрые методы получения и выделения этих радионуклидов с использованием следующих ядерных реакций с дейтронами при энергии 12,3 МэВ:



Из облученных на циклотроне У-120 мишеней радионуклиды выделялись методами статической и динамической экстракции, а также ионообменной хроматографии. Препараты для внутривенного впрыскивания готовились в виде растворов лимонной кислоты. Радиохимическая чистота препаратов определялась гамма-спектрометрически и соответствовала требованиям радиофармацевтических стандартов. Полученные нами препараты клинически исследовались на животных и применялись в следующих научно-исследовательских центрах:

- а) ^{67}Ga и ^{169}Yb в научно-исследовательской лаборатории Отдела ядерной медицины и радиобиологии Медицинской академии (Лодзь) для диагностики злокачественных опухолей;
- б) ^{74}As в хирургической клинике Медицинской академии (Краков) для разработки методики выделения из организма животных неорганических ядов.

МЕТОДИКА ПОЛУЧЕНИЯ ПРЕПАРАТОВ

а) Получение препаратов галлия-67

Цинковая мишень облучалась в течение 6 часов на пучке дейтронов с интенсивностью ~ 20 мкА. Радиохимическая обработка мишени начиналась после суточной выдержки, необходимой для распада короткоживущих ^{66}Ga и ^{68}Ga . Затем мишень растворялась в 7 М HCl , раствор фильтровался, и галлий в виде ионов GaCl_4^- двукратно экстрагировался диизопропиловым эфиром. Органическая фаза трехкратно промывалась раствором соляной кислоты, и галлий извлекался путем рекстракции дистиллированной водой. Далее водный раствор выпаривался, и добавлялся раствор лимонной кислоты для получения препарата галлия в виде лимоннокислого раствора, который пропусклся через бактериологический фильтр *M. 22* (0,22) и стерилизовался при температуре 120°C .

Применение диизопропилового эфира позволяет сократить время выделения галлия по сравнению с ранее использованной методикой ионообменной хроматографии. Полученный нами коэффициент разделения в системе галлий-цинк равен 10^5 .

б) Получение препаратов иттербия-169

Иттербий-169 извлекался из растворенной туливовой мишени методом ионообменной хроматографии. Применялась ионообменная смола ДАУЗКС 50x12 с размером зерна 500 меш. Адсорбированный на колонке иттербий элюировался раствором 0,156-М лактата аммония с $\text{pH}=4,62$ при температуре 87°C . Затем элюат лактата иттербия переводился через хлоридную форму в лимонную. Дальнейшие операции получения фармакологического препарата иттербия аналогичны операциям, описанным выше, при выделении галлия-67.

в) Получение препаратов мышьяка-74

Германиевая мишень растворялась в цапской водке, раствор выпаривался и путем добавления соляной кислоты доводился до концентрации ~ 7 М. Затем раствор пропусклся через ионообменную колонку, заполненную смолой ДАУЗКС 1x8. В этих условиях неадсорбирующийся на колонке мышьяк отделяется от материала мишени. Путем разбавления до концентрации 0,01 М HCl препарату придается фармакологическая форма, которая и стерилизуется.

**Приборы
и техника эксперимента**

МНОГОПРОВОЛОЧНЫЕ ДЕТЕКТОРЫ ДЛЯ МЕДИКО-БИОЛОГИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Ю.В. Заневокий

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Одной из первых попыток применения многопроволочных детекторов в области, не относящейся к физике высоких энергий, было использование (по предложению Л. Альвареса в 1965 г.) проволочных искровых камер для поиска скрытых полостей в Египетской пирамиде Хефрена (высота пирамиды 145 м). Несколько камер размером $2 \times 2 \text{ м}^2$ и набор сцинтилляционных счетчиков располагались в нижней части пирамиды (рис. 1) для изучения углового распределения космических мюонов. Увеличение интенсивности мюонов в одном направлении могло бы указать на наличие полости в верхней части пирамиды. Однако анализ двух миллионов треков не подтвердил существования полости^{1/}.

Многопроволочные пропорциональные камеры (ПК), созданные и широко применяемые в физике высоких энергий^{2/}, в последние годы интенсивно внедряются в смежные области исследований^{3-6/}. Возможность получения импульса запуска, считывания двух координат с одной ПК позволяет успешно использовать эти детекторы для регистрации нейтральных частиц. Кроме того, ПК обладают высоким пространственным разрешением и большим быстродействием. Применение ЭМ на линии с этими детекторами позволяет количественно оценивать информацию об исследуемом объекте в реальном масштабе времени. Ниже будут рассмотрены примеры использования ПК в биофизике, ядерной медицине, радиографии.

Пропорциональные камеры в биофизике. При исследовании структуры кристаллов, с параметрами ячейки до нескольких сотен ангстрем (белков, нуклеиновых кислот), необходимо определять интегральную интенсивность десятков и сотен тысяч "отражений". Интенсивность их различна, что требует значительного времени для обеспечения статистической ошибки не более нескольких процентов. В результате даже в быстродействующих одноканальных дифрактометрах время эксперимента составляет десятки суток, что несовместимо с

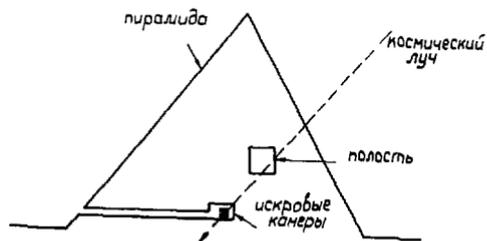


Рис. 1. Исследование полостей в пирамиде Хеброна с помощью проволочных камер.

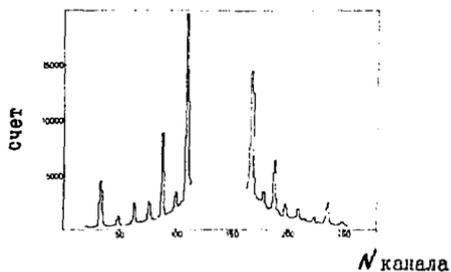


Рис. Дифракционная картина коллагенов хвоста рыбы.

радиационной прочностью кристаллов. Очевидно, что для этих целей необходимы многоканальные координатные детекторы большой площади, обладающие хорошей эффективностью и высоким быстродействием. Пространственное разрешение детектора должно быть не хуже размера отражения.

В работах^{7,8/} показана возможность использования ПК для изучения структуры кристалла белка дифракционным методом. Полное число разрешаемых элементов ПК составляло $256 \times 256 = 65000$. Быстродействие системы около 3×10^4 л/с. Эффективность регистрации фотонов с энергией 8 КэВ составила 48%. Аналогичный детектор размером 256×256 мм² описан в работе^{9/}. Он имеет 128 x 128 \approx 16000 каналов. Предельное быстродействие детектора 4×10^5 л/с. Недостатком плоской конструкции ПК является ухудшение пространственного разрешения из-за значительной толщины камеры при больших углах падения фотонов. Камера со сферическим промежуточком^{10/} имеет одинаковое разрешение по всей площади. Однако в этом случае необходимо иметь постоянное расстояние между кристаллом и детектором, что накладывает ограничения на верхний предел параметров ячейки кристалла. ПК имеют на два порядка более высокую чувствительность по сравнению с фотопленкой, что позволяет снизить радиационную нагрузку на исследуемый объект. Высокое быстродействие ПК дает возможность зарегистрировать несложную рентгенограмму за несколько секунд, т.е. за короткое время исследовать изменение структуры объекта.

Как показано в работах^{11,12/}, ПК можно использовать для изучения молекулярной структуры мышечной ткани, подверженной сжатию. Мышца стимулируется электрическим импульсом от генератора, управляемого с помощью ЭМ. Однокоординатный детектор позволяет измерить распределение рентгеновского излучения вдоль одной координаты (рис. 2). При исследовании кристаллических структур с параметрами ячейки до 20 ангстрем рентгеновские лучи сильно поглощаются, тогда как для медленных нейтронов объект прозрачен. Для этих целей разрабатываются на основе ПК двумерные детекторы медленных нейтронов. В работе^{13/} создана камера размером 18 x 18 см², заполненная смесью ³He (60%) + Ar (40%) под давлением 10 атм. Эффективность регистрации нейтронов с длиной волны 2,7 ангстрема составила 70%, пространственное разрешение около 3 мм. Другая камера, размером 64 x 64 см², заполнялась BF₃ при давлении 1,2 атм и обладала эффективностью 50% (для нейтронов с

LHE
JINR

Рис. 3. Авторадиограмма (снимок с экрана телевизора), характеризующая разрешение прибора. Надпись выполнена с помощью раствора, содержащего тритий. Диаметр пятен, из которых составлены буквы, и промежутки между границами пятен — около 2 мм.

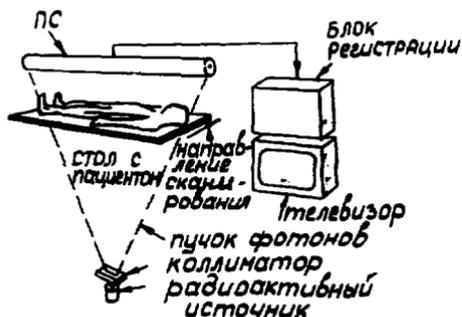


Рис. 4. Схема установки для радиографии больших объектов. ПС — пропорциональный счетчик.

длиной волны 6 ангстрем) и пространственным разрешением $10 \text{ мм}^{14/}$. На основе ПК создаются автоматизированные устройства для анализа радиохроматограмм^{15,16/}, широко используемых для количественного и качественного анализа биологически активных веществ, меченых радиоактивными нуклидами. Здесь ПК применяются для регистрации излучения вещества - носителя хроматографических зон на различных подложках. В этом случае достигается чувствительность около 10 пКи/см^2 . Способность разрешения двух соседних зон, меченных тритием, не хуже $2 + 3 \text{ мм}$ (рис. 3). Время, необходимое для проведения измерений одной радиохроматограммы, не превышает 15 мин.

Пропорциональные камеры в медицине и радиологии. В ядерной медицине, где объект, в который введен радиоактивный нуклид, "просматривается" позиционно-чувствительным детектором, применение ПК также весьма перспективно. Используемые для этих целей гамма-камеры (на основе кристалла NaI) обладают высокой эффективностью регистрации фотонов и хорошим быстродействием, однако пространственное разрешение составляет $6 + 10 \text{ мм}$. В диапазоне энергий фотонов от 20 до 80 КэВ ПК имеют преимущества перед гамма-камерами. Они превосходят гамма-камеры по быстродействию и пространственному разрешению и имеют достаточно хорошую эффективность^{17-19/}. ПК могут успешно использоваться для исследования щитовидной железы, легких и т.д. С увеличением энергии фотонов (выше 100 КэВ) необходимо применять специальные меры для получения в ПК достаточно высокой эффективности (исенон под давлением, специальные конвертеры-коллиматоры)^{20,21/}. Эта проблема особенно остро возникает в позитронных установках^{22,23/}.

Возможность применения ПК в рентгеновской радиологии небольших объектов показана в работе^{24/}. Для получения рентгенограмм объектов размером до $2 \times 2 \text{ м}^2$ разработано линейно-сканирующее устройство на основе позиционно-чувствительного пропорционального счетчика^{25/}. Схема установки показана на рис. 4. Коллимированный пучок фотонов облучает часть объекта. Стол с пациентом передвигается в одном направлении (координата Y). Координата X в счетчике регистрируется по времени фронта сигнала.

В ЦЕРНе проводятся исследования по применению пропорциональных камер в ядерной рассеивающей радиологии^{26/}. На рис. 5 показана схема такой установки. Две камеры до объекта определяют

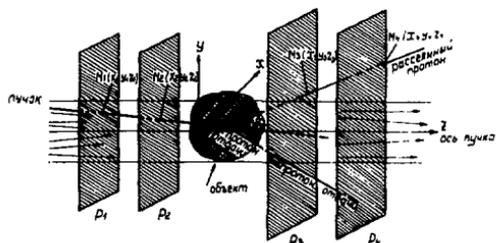


Рис. 5. Схема установки для протонной ядерной рассеивающей радиографии. $P_1 + P_4$ - пропорциональные камеры.

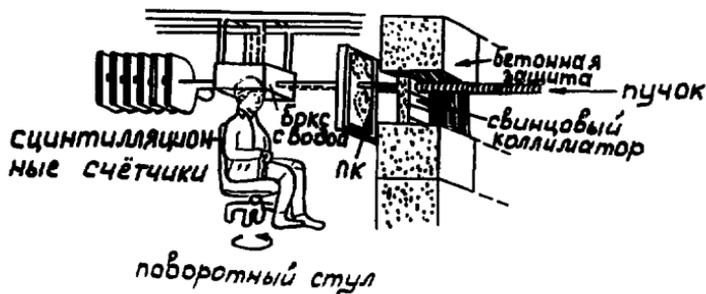


Рис. 6. Схема томографической установки для ионной радиографии.

траекторию первичного протона ($E = 600 + 1000 \text{ МэВ}$), а две после объекта — траектории рассеянного протона и протона отдачи. Стандартные системы сбора и анализа данных используются для реконструкции вершины взаимодействия. Эта информация обеспечивает получение трехмерной картины распределения плотности объекта. Проведены предварительные измерения на животных. Объемное разрешение ограничивается статистикой до 43 мм^3 . Число событий на элементарный объем $3,5 \times 3,5 \times 3,5 \text{ мм}^3$ составляет 170. Общая доза в результате экспозиции не превышает десятых долей рад.

Другой метод основан на том, что резкое изменение поглощения веществом ионов с энергией около 200 МэВ/нуклон позволяет получить контрастное изображение даже при незначительных изменениях толщины (плотности) объекта. Исследования в этом направлении проводятся на пучках ионов в LBL (США) и ЛВЭ ОИЯИ^{27,28}. Схема одной установки показана на рис. 6²⁷. Изменение энергии частицы, вызванное неоднородностью плотности исследуемого объекта, детектируется остремой сцинтилляционных счетчиков. ПК определяет координату входа частицы. Кресло с объектом поворачивается с шагом $2,8^\circ$. В каждом из 64 положений объекта набиралось 5 тыс. событий. Разрешение метода по плотности составляет $0,1\%$, что дает возможность обнаруживать в мягких тканях опухоли диаметром $3 + 4 \text{ мм}$. Такие установки могут использоваться для томографического обследования пациентов. Суммарная радиационная доза, получаемая объектом, не превышает десятых долей рад.

Заключение

Высокая чувствительность ПК к длинноволновому рентгеновскому излучению упрощает на относительную простоту создания установок для рентгеновской дифрактометрии. Здесь ПК пока находится вне конкуренции. В области нейтронной радиографии применение ПК также представляет большой интерес (по сравнению с традиционными для этой области детекторами).

В ядерной медицине при детектировании фотонов с энергией до 100 КэВ ПК являются перспективным инструментом. Лучшее пространственное разрешение и более высокое быстродействие обеспечивает им преимущество по сравнению с детекторами на основе кристаллов NaI.

Результаты, полученные в работах по протонной и ионной радиографии, показывают, что данная методика позволяет на порядок уменьшить дозы при обследовании пациентов по сравнению с ЕМ1 - сканерами.

Л и т е р а т у р а

1. L.Alvarez et al. Science, 1970, v.167, p.832.
2. G.Charpak et al. Nuclear Instrum.and Meth., 1968, v. 62, p. 262.
3. V.Perez-Mendez. Proc. Intern. Meeting on Proportional and Drift Chambers, JINR, D13-9164, Dubna, 1975.
4. Ю.В.Заневский, В.Д.Пешехонов. ПТЭ, 1978, № 2, стр. 7.
5. Ю.В.Заневский. Проволочные детекторы элементарных частиц, Москва, Атомиздат, 1978, стр. 123.
6. G.Charpak. Proc. Wire Chamber Conference, Vienna, 1978.
7. C.Cork et al. J. Appl. Crystallogr., 1974, v.7, p. 319.
8. C.Cork et al. Acta Crystallogr., 1975, v.A-31, p. 702.
9. С.Е.Бару и др. Труды III Международного совещания по пропорциональным и дрейфовым камерам, Д13-И1807, Дубна, 1978.
10. G.Charpak et al. Nuclear Instr. and Meth., 1974, v.122, p.307.
11. A.R.Faruqi. IEEE Trans.Nucl.Sci., NS-22, 1975, p.199.
12. А.А.Вазина и др. Труды III Международного совещания по пропорциональным и дрейфовым камерам. Д13-И1807, Дубна, 1978.
13. J.Alberi et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1975, v.NS-22, p.255.
14. R.Allemand et al. Nucl. Intr. and Meth., 1975, v.126, p.29.
15. Ю.В.Заневский и др. Препринт ОИЯИ, Р14-10934, 1977.
16. Ю.С.Анисимов и др. Препринт ОИЯИ, Р14-11309, 1978.
17. L.Kaufman et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1972, NS-19, p.169.
18. L.Kaufman et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1973, NS-20, 426.
19. J.Durand et al. Annales de Physique Biologique et Médicale, 1973, 8 (1), 38.
20. A.P.Jeavons et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1976, NS-23,1, 640.
21. D.Chu et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1976, NS-23, 1, 634.
22. С.В.Лим et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1975, NS-21, 85 .
23. С.В.Лим et al. IEEE Trans. Nucl.Sci., 1975, NS-22, 388.
24. S.Kaplan et al. Nucl.Instr.and Meth., 1977, v.106, 397.
25. С.Borkowski et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1975,NS-22, 89, 6.
26. J.Saudinos et al. Phys.Med.Biol., 1975, 20, 890.
27. K.M.Crowe et al. IEEE Trans.Nucl.Sci., 1975, NS-22, 1752.
28. Ю.С.Анисимов и др. Препринт ОИЯИ, Р13-И1872, 1978.

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПУЧКА ИОНОВ ГЕЛИЯ СИНХРОФАЗОТРОНА ОИЯИ ДЛЯ РАДИОГРАФИИ

Ю.С.Анисимов, Н.Н.Говорун, В.М.Головатюк, Ю.В.Заневский, А.Б.Иванов, И.М.Иванченко, В.А.Крамеренко, П.В.Мошачев, Л.Моучка, В.Д.Пешехонов, И.Н.Семенюшкин, А.Е.Сеннер, Б.Ситар, И.А.Тяпкин, С.П.Черненко

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Заряженные частицы – протоны, ионы благодаря особенностям их взаимодействия с веществом позволяют проводить радиографическое обследование при существенно меньших, по сравнению с рентгеновским излучением, дозах облучения и дают большую информацию о тонкой анатомической структуре^{1/1}. Создание низкоэнергетичных выведенных пучков многозарядных ионов на синхрофазотроне ОИЯИ^{1/2} позволило начать методические исследования в этом направлении^{1/2}.

Для проведения радиографических исследований на пучке ионов гелия с энергией 200 МэВ/нуклон была создана установка на основе многопроволочных пропорциональных камер (ПК), работающих на линии с ЭВМ НР-2116В. Схема расположения аппаратуры показана на рис. 1. В состав установки входят сцинтилляционные счетчики (S_1 ,

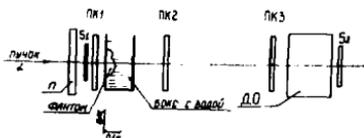


Рис. 1

используемых в качестве поглотителя – П, а также блок с водой для размещения исследуемого объекта с целью устранения эффекта геометрической формы.

Детектор остановки состоит из 12 пропорциональных камер с чувствительной площадью $280 \times 280 \text{ мм}^2$, размещенных в едином газовом объеме.

S_2); двухкоординатные пропорциональные камеры (ПК1 + ПК3); модуль из пропорциональных камер для определения точки остановки частиц – ДО ("детектор остановки"); набор высокоточных пластин из оргстекла ($\rho = 1,18 \text{ г/см}^3$),

Таким образом, ДО представляет собой систему из 12 независимых газовых счетчиков (каналов) с размещенными между ними поглотителями толщиной $0,095 \text{ г/см}^2$, роль которых выполняют алюминиевые катоды.

При помощи созданного комплекса программы обработка данных осуществлялась в режиме "on-line" с целью получения основных характеристик и оптимизации режима работы. При этом объект "проецируется" на плоскость, ортогональную оси пучка, и исследуемая площадь разделяется на элементарные ячейки, количество которых - 100×100 . Анализируются статистически нормированные распределения точек останова частиц в ДО по каждой элементарной ячейке. Окончательная радиографическая информация об исследуемом объекте выводится на ТВ-монитор.

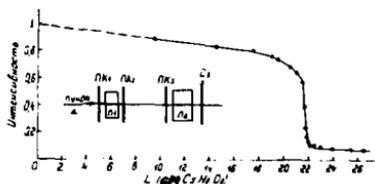


Рис. 2

На рис. 2 показана зависимость ослабления потока пучковых частиц от количества пройденного ими вещества. Величина пробега составляет примерно $25,9 \text{ г/см}^2$ тканеэквивалентного вещества, что соответствует энергии альфа-частиц $\sim 200 \text{ МэВ/кулон}$. Схема измерений представлена на том же рисунке. Между ПК1 и ПК2 находилось вещество П1, поглотитель переменной толщины П2 размещался между ПК3 и ДО. СИ - первый счетчик ДО. Определялось отношение счета СИ к монитору (A1-A2-A3), где Ai - анодные сигналы соответствующей ПК.

Пучок имел следующие размеры - по горизонтали около 8 см, по вертикали около 12 см. Собственная угловая расходимость пучка меньше 10 миллирадиан.

При проведении радиографических исследований в триггер дополнительно были выключены S_2 и S_{12} , работающие в режиме анти-совпадений. Это позволило исключить небольшую долю длиннопробежных частиц, присутствующих в пучке.

Чувствительность к изменению плотности зависит от стретглинга, энергетического разброса пучка, аппаратурных погрешностей, влияния многократного рассеяния на измеряемую величину пробега. Однако последние два фактора в нашем случае были пренебрежимо малы. С помощью гистограмм статистического распределения точек

остановки по каналам ДО для тканеэквивалентных гомогенных поглотителей различной толщины была проведена калибровка ДО. Результаты представлены на рис. 3. Цена канала детектора остановки соответствует $0,082 \text{ г/см}^2$ тканеэквивалентного вещества.

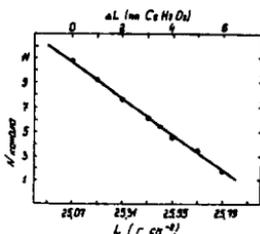


Рис. 3

Статистическое распределение точек остановки в ДО хорошо описывается нормальным распределением и стандартное отклонение $\sigma = 0,155 \text{ г/см}^2$. Это значит, что установка дает возможность определять изменения плотности в объекте на $0,024 \text{ г/см}^2$ ($0,2 \text{ мм оргстекла}$) при статистике $N > 42$ μ /ячейку.

Пространственное разрешение метода определяется координатной точностью детекторов и многократным рассеянием.

Для получения изображения объектов использовались фантомы из оргстекла переменного сечения с набором отверстий различного диаметра. Фантомы устанавливались в воздухе непосредственно перед боксом с водой или помещались в воду. При размещении фантома толщиной ℓ (см) в боксе, изменение плотности соответствовало величине $\Delta\rho = 0,18\ell$ (г/см^2). Информация записывалась на магнитную ленту для последующего анализа, а также обрабатывалась в режиме

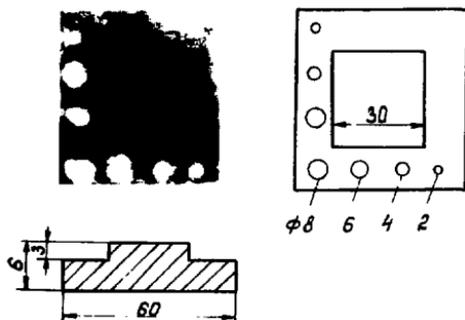


Рис. 4

"on-line" и результаты представлялись на цветном ТВ-мониторе.

На рис. 4 приведена радиограмма (снимок с экрана телевизора) фантома из оргстекла, помещенного в бокс с водой. Там же показаны геометрические размеры фантома. Изменения плотности соответствуют $\sim 0,05 \text{ г/см}^2$ и $\sim 0,1 \text{ г/см}^2$. Видны отверстия диаметром 2, 4, 6 и 8 мм.

При статистической обеспеченности - 100 событий на ячейку размером $2,5 \times 2,5 \text{ мм}^2$ хорошо регистрировалось $\Delta\rho = 0,024 \text{ г/см}^2$, что соответствует изменению плотности относительно полной толщины поглотителя на величину 0,09%. Поглощенная доза при этом составила величину около 1 мрад.

Авторы считают своим долгом поблагодарить М.Н.Хачатуряна за помощь в выполнении работы, а также И.Б.Иссинского, С.А.Новикова, А.Д.Кириллова за создание медико-биологического пучка.

Авторы благодарят также всех сотрудников Лаборатории высоких энергий, оказавших помощь при создании установки.

Л и т е р а т у р а

1. Ю.В.Заневский и др., ОИЯИ, I4-II330, Дубна, 1978.
2. А.М.Балдин и др., ОИЯИ, 9-II796, Дубна, 1978.

альфа-частицей дрейфового промежутка и регистрацию ее сцинтиляционным счетчиком. В камере создается электрическое поле с напряженностью E . По определяемым координатам двух точек $A(x_1, y_1, z_1)$ и $B(x_2, y_2, z_2)$ реконструируется трек альфа-частицы, точка пересечения которого с плоскостью конвертора $P(X, Y)$ считается точкой конверсии нейтрона. Координаты x_1 и x_2 определяются по времени дрейфа электронов от точек A или B до анода соответствующего пропорционального счетчика Π_1 или Π_2 . В качестве "старта" используются сигналы от сцинтиляционного счетчика и "стопа" - сигналы с анодов счетчиков Π_1 и Π_2 . Ширина входных щелей счетчиков определяет амплитуду сигналов, что позволяет дискриминировать слабоионизирующие частицы, а также влияет на величину пространственного разрешения в случае наклонных треков.

Определение y -координат точек A и B проводится с помощью линий задержки (ЛЗ_1 и ЛЗ_2), которые являются частью катодов счетчиков Π_1 и Π_2 . Координаты λ и Y точки P в плоскости конвертора определяются выражениями:

$$X = \frac{x_1 z_2 - x_2 z_1}{z_2 - z_1}, \quad Y = \frac{y_1 z_2 - y_2 z_1}{z_2 - z_1}.$$

В настоящее время изготавливается НДПК с эффективной площадью размером $100 \times 200 \text{ мм}^2$ и высотой дрейфового промежутка 30 мм .

В качестве рабочего наполнения возможно использовать пары метилалла, этилен, изобутан и др. при низком давлении. При организации отбора событий по заданному наименьшему допустимому углу наклона трека, может быть достигнуто пространственное разрешение прибора около 300 мкм .

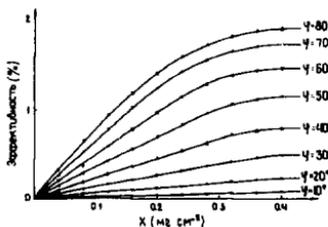


Рис. 2а

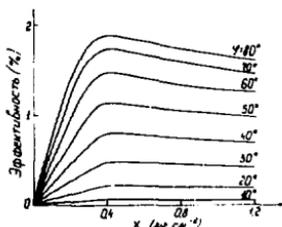


Рис. 2б

Для конвертора из обогащенного изотопом ^{10}B до 90% проведены расчеты эффективности детектора. Зависимость эффективности от толщины конвертора приведена на рис. 2: рис. 2а - для заднего конвертора, рис. 2б - для переднего конвертора. Кривые соответствуют разным, наиболее допустимым углам наклона треков φ .

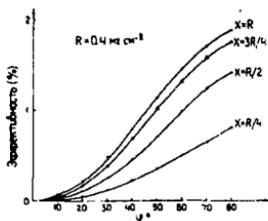


Рис. 3а

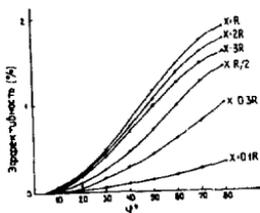


Рис. 3б

Зависимости эффективности НДПК от величины наиболее допустимого угла наклона трека φ приведены на рис. 3а для заднего и на рис. 3б - для переднего конвертора.

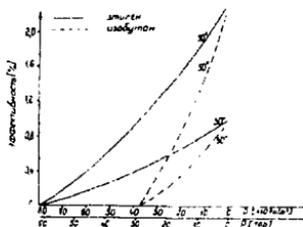


Рис. 4

На рис. 4 (передний конвертор) приведены зависимости эффективности от давления рабочего газа в случае этилена и изобутана. Преимуществом детектора низкого давления является уменьшение чувствительности к отсутствующему гамма-излучению.

НДПК может работать на линии с ЭВМ. Величина пространственного разрешения прибора ожидается 0,3 мм при эффективности около 1%, что сравнимо с разрешением телевизионных систем, используемых в нейтронной радиографии [2]. Малая эффективность к гамма-излучению позволяет использовать детектор для радиографии облученных топливных элементов реакторов.

В заключение авторы благодарят Ю.В.Заневского за полезные обсуждения и интерес к работе.

Л и т е р а т у р а

1. Ю.В.Заневский, В.Д.Пешехонов, ПТЭ, 1978, 2, стр. 7.
2. M.R.Hawkesworth. Atomic Energy Review, 1977, v.15, No. 2, p. 169.
3. J.Alberi et al., IEEE Trans. Nucl. Sci., 1975, NS-22, 225.
4. A.P.Jeavons et al., Nucl. Instr. and Meth., 1978, 148, p. 29.

ОБЗОР РАБОТ ОИЯИ ПО КРИОГЕННОМУ ОБЕСПЕЧЕНИЮ СВЕРХПРОВОДЯЩИХ УСТРОЙСТВ

Н.И.Баландиков, А.Г.Зельдович

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

I. ГЕЛИЕВЫЕ РЕФРИЖЕРАТОРЫ

Одним из главных элементов криогенного обеспечения сверхпроводящих устройств является гелиевый рефрижератор. До появления крупных сверхпроводящих устройств в научных учреждениях использовались только гелиевые ожижители, и их продукцией был жидкий гелий для экспериментальных целей. При необходимости термостатировать крупные объекты стало целесообразным возвращать холодный пар жидкого гелия в ожижитель, который превратился таким образом в рефрижератор— устройство, поддерживающее заданный уровень температуры. Использование холода пара повышает холодопроизводительность рефрижераторного охлаждения примерно в 4 раза по сравнению с охлаждением жидким гелием без использования холода пара (ожижительный режим). Большинство крупных сверхпроводящих устройств имеет неотключаемые токовводы, на охлаждение которых необходимо использовать часть холодного пара. В этом случае гелиевый рефрижератор работает в смешанном режиме. Впервые это обстоятельство учли в работе ¹/, где авторы построили экспериментальную зависимость между холодопроизводительностью и количеством охлаждаемого гелия (охлаждение токовводов холодным паром эквивалентно ожижению гелия). Надо отметить, что режимы работы рефрижераторной установки различны в периоды охлаждения, заполнения сосудов охлажденным гелием и в основном — рефрижераторном режиме. Изменение режима работы должно сопровождаться изменением распределения потоков газа по детандерной и дроссельной ветвям. В ожижительном режиме поток газа через детандер примерно вдвое больше, чем в рефрижераторном. Наиболее удобна была бы установка, в которой можно было бы легко изменять соотношения между потоками. Такого типа установкой является ожижитель с поршневым детандером. Однако поршневой детандер имеет меньший ресурс работы, чем турбодетандер. Это утверждение вполне справедливо для очень крупных турбодетан-

дерев, которые могли бы использоваться на установках с холодопроизводительностью в десятки кВт. Это утверждение становится менее достоверным для малых турбодетандеров с очень большим числом оборотов. Применение малых турбодетандеров также существенно осложняет регулировку установки, т.к. при заданном температурном уровне количество газа, проходящего через сопловой аппарат турбодетандера, практически не меняется. Осуществление же известных способов регулирования производительности турбин: поворотом лопаток, изменением парциальности, изменением ширины соплового отверстия практически неосуществимо из-за миниатюрных размеров машины. У реально выполненной установки нельзя также изменить поверхность теплообмена. До сих пор при проектировании охладителя или рефрижератора расчет велся на какой-нибудь один предельный режим.

Нами [2,3] было исследовано расчетно и экспериментально, как меняется режим работы гелиевого рефрижератора, у которого условия работы отличаются от заданных при проектировании.

Для расчета была выбрана схема рефрижератора с ванной жидкого азота, расширением части газа в детандере с регулируемой производительностью и дросселированием (рис.1). В качестве конкретных исходных данных приняты: расход сжатого гелия ($\dot{m} = 60$ г/с), давление в прямом $P_1 = 25$ атм и обратном $P_2 = 1,2$ атм потоках, поверхность и коэффициент теплопередачи в теплообменниках $KF_1 = 4780$ Вт/К, $KF_2 = 910$ Вт/К, $KF_3 = 1390$ Вт/К температура предварительного охлаждения $T_1 = 80$ К. Рассматривалась система уравнений теплопередачи и энергетического баланса [2], для решения которых использовалась ЭВМ.

На рис.2 приведены оптимальные характеристики рефрижератора при различных значениях КПД детандера. Видно, что эффективность работы гелиевого рефрижератора в охладительном режиме сильнее зависит от КПД детандера, чем в рефрижераторном. На рис.3 приведена зависимость коэффициента охладения от температуры перед детандером и удельной тепловой нагрузки. На рис.4 — то же, в случае замены дроссельного вентиля парожидкостным детандером. На рис.5 приведена характеристика рефрижераторов с дросселем и с парожидкостным детандером. Видно, что введение парожидкостного детандера сильнее сказывается в рефрижераторном режиме ($\varphi_2/\varphi_1 = 2,5$), чем в охладительном ($x_2/x_1 = 1,5$).

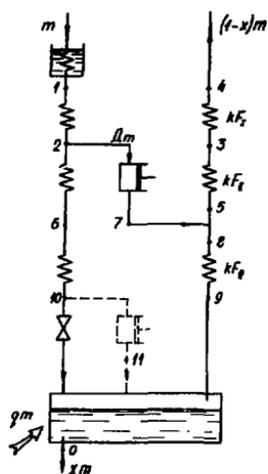


Рис. I. Схема рефрижератора. m - поток сжатого гелия;

x_m - доля охлажденного или отведенного через тоководы гелия; Q_{m1} - холодопроизводительность в рефрижераторном режиме, включая приток тепла из окружающей среды; Δ_{m1} - доля сжатого гелия, отводимая на детандер; $K_{F1} \div K_{FII}$ - произведение коэффициента теплопередачи на поверхность соответствующего теплообменника.

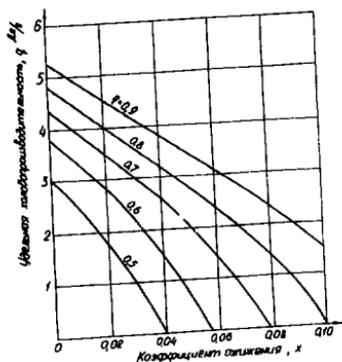


Рис. 2. Оптимальные характеристики рефрижератора при различных значениях КПД детандера (η).

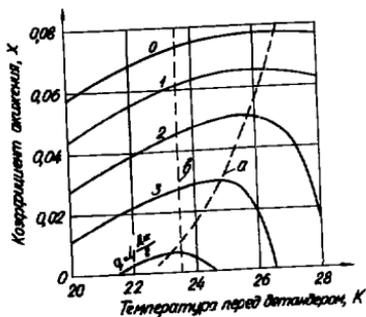


Рис. 3. Зависимость коэффициента ожежения от температуры перед детандером и удельной тепловой нагрузки (q). "а" - оптимальное регулирование; "б" - регулирование при $T = \text{const}$.

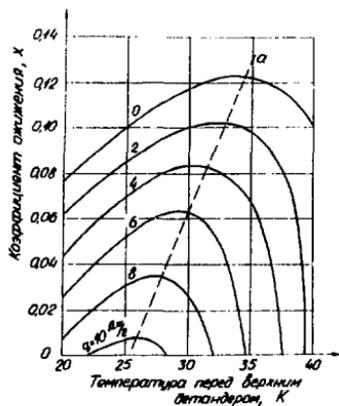


Рис. 4. Зависимость коэффициента охлаждения от температуры перед верхним детандером и удельной тепловой нагрузки (q) в схеме с парожидкостным детандером. "а" - оптимальное регулирование.

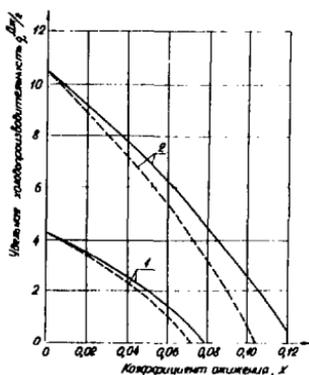


Рис. 5. Характеристики рефрижератора. 1 - схема с дросселем; 2 - схема с парожидкостным детандером. Сплошные кривые - оптимальное регулирование, пунктирные - регулирование при постоянной температуре перед верхним детандером.

В ОИЛИ была исследована серийная турбодетандерная криогенная установка ХГУ-250/4,5^{/3/}. Схема ее приведена на рис.6. В этой установке имелся нерегулируемый дроссель для улучшения работы теплообменника УП. Таким образом, отсутствовало активное регулирование распределения потоков между турбодетандерной и дроссельной ветвями.

На рис.7 приведены экспериментальные характеристики установки. В режиме без предварительного азотного охлаждения увеличение рефрижераторной нагрузки уменьшало обратный поток холодного гелия, вследствие чего росла температура перед детандером. Последнее уменьшало пропускную способность детандера и установки в целом и приводило к малому увеличению сжижительной нагрузки при снижении рефрижераторной нагрузки (плоский вид характеристики I).

Применение предварительного азотного охлаждения (характеристика 2) увеличивает холодопроизводительность установки в сжижительном режиме, но не позволяет осуществлять комбинированный режим с большой холодопроизводительностью из-за низкой температуры перед турбодетандерами и нарушения их работы.

В дальнейшем был увеличен проход нерегулируемого дросселя НВ, что позволило регулировать поток с помощью регулируемого дросселя РВ. При этом удалось избежать неустойчивых режимов и значительно повысить холодопроизводительность установки в комбинированном режиме при использовании жидкого азота — см.рис.8, характеристику 3. Запас поверхности теплообменников позволил увеличить количество гелия, подаваемого на установку, что существенно увеличило ее холодопроизводительность (см.рис.8, характеристика 4) и уменьшило удельный расход энергии в I,2-I,3 раза. Здесь следует заметить, что в форсированном режиме температура жидкого гелия в ванне возросла с 4,45 до 4,6 К, что при заданном запасе надежности может увеличить расход N/GT_i проводника на 5-7%. Следует также отметить, что во время пуска гелиевого рефрижератора рекуперация выносимого тепла в теплообменниках снижает темп охлаждения. Рационально иметь несколько обходных вентилях на линии обратного или прямого потоков (рис.9), позволяющих включать низкотемпературные теплообменники по мере охлаждения системы. Анализ^{/4/} показал также, что темп охлаждения лимитируется либо допустимым градиентом температуры в объекте, либо гидравлическим сопротивлением линии возврата газа и мало зависит от условий теплоотдачи. Кроме того, при

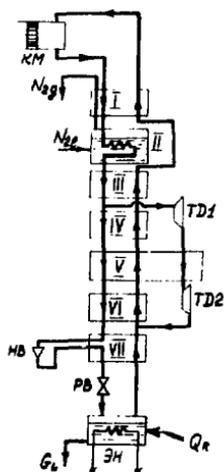


Рис.6. Принципиальная схема установки ХГУ-250/4,5. НВ - нерегулируемый дроссель; РВ - регулируемый дроссель; ЭН - электроннагреватель; Q_R - рефрижераторная нагрузка; G_c - оживительная нагрузка.

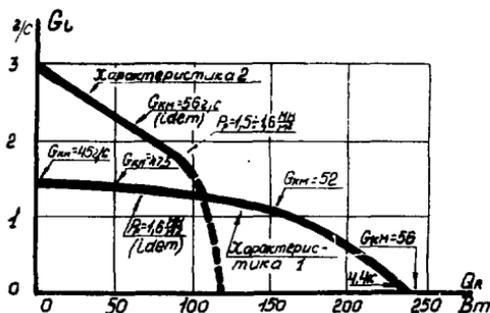


Рис.7. Характеристика установки ХГУ-250/4,5 с нерегулируемым дросселем ϕ 1,8 мм. Характеристика I - режимы без предварительного азотного охлаждения. Характеристика 2 - режимы с предварительным азотным охлаждением.

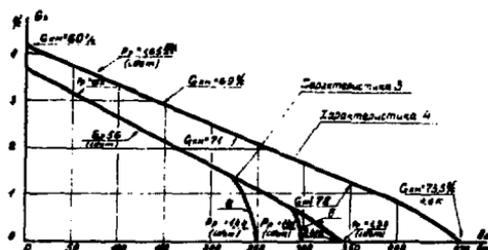


Рис.8. Характеристика установки ХТУ-250/4,5 с нерегулируемым дросселем \varnothing 3,5 мм. Характеристика 3 - режимы с предварительным азотным охлаждением при постоянном расходе сжатого газа $G_{KM}=56$ г/с и переменном давлении сжатого газа P_p от 1,55 до 1,34 МН/м². Характеристика 4 - режимы с предварительным азотным охлаждением при постоянном давлении $P_p=1,65$ МН/м² и повышенных расходах сжатого газа G_{KM} от 60 до 73,5 г/с.

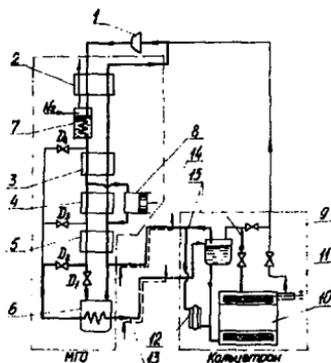


Рис.9. Принципиальная схема системы рефрижератор МТО - соленоид СПС-600. I - компрессор; 2-5 - теплообменники; 6 - сборник жидкого гелия; 7 - ванна жидкого азота; 8 - детандер; 9 - промежуточный сосуд соленоида; 10 - соленоид СПС-600; 11 - тоководы; 12 - резонатор; 13,14,15 - криогенные магистрали; D_1 - дроссельный вентиль; D_2, D_3, D_4 - обводные вентили.

криостатировании сверхпроводящих устройств с охлаждаемыми токовводами существует оптимальный поток охлаждающего токоввода газа, при котором достигаются максимальные скорость накопления жидкого гелия или холодопроизводительность. Если скорость накопления жидкого гелия за счет работы рефрижератора мала, целесообразно залить в криостат объекта заранее накопленный гелий.

II. КРИОСТАТИРОВАНИЕ С ПОМОЩЬЮ ЭЖЕКТОРА

Важным элементом криогенного обеспечения сверхпроводящего устройства является система криостатирования. Наиболее распространено криостатирование путем погружения сверхпроводящего устройства в ванну кипящего жидкого гелия. Для небольших и простых систем такой способ удобен и эффективен. Ситуация меняется, когда сверхпроводящая система имеет сложную конфигурацию (например, магниты для "Токомаков"), большую протяженность (например, СП линии электропередач и СП ускорители частиц) или когда предъявляются требования легкой доступности к элементам системы (например, СП ускорители заряженных частиц). В последних случаях становится целесообразным применить какую-либо циркуляционную систему охлаждения. В таких системах охлаждающий гелий принудительно проталкивается тем или иным способом по каналам сверхпроводящей системы.

Широко известен способ, в котором циркуляция гелия обеспечивается механическим насосом. Главные недостатки этого способа: насос вносит значительное количество тепла в систему и имеет ограниченную продолжительность работы без ремонта.

Нами был проработан расчетно и экспериментально другой способ циркуляции охлаждающего гелия - с помощью эжектора ^{/5/}. Эжектор - устройство, достаточно известное в технике. Принцип действия его состоит в том, что поток сжатого газа разгоняется в сопле и увлекает за собой инжектируемый поток. Смешанный поток расширяется в диффузоре, при этом снижается его скорость и увеличивается статическое давление. На рис. 10 показана схема циркуляции охлаждающего гелия с помощью струйного насоса. Теория струйного насоса ^{/5,6/} основана на использовании уравнения импульсов и коэффициентов скоростей, учитывающих потери в различных частях аппарата. Для наших целей эжектор должен иметь такой коэффициент инжекции (отношение расхода инжектируемого потока к расходу рабочего потока), который обеспечит малую разность температур выходящего и входящего потоков, охлаждающих термостатируемый

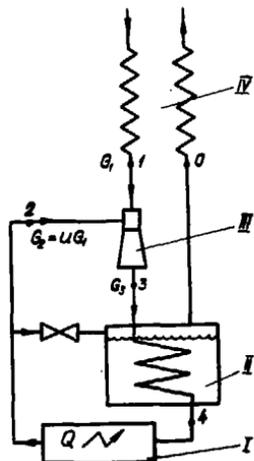


Рис. 10. Схема циркуляции жидкого гелия в системе со струйным насосом. I - криостатируемый объект; II - сборник жидкого гелия; III - струйный насос; IV - теплообменник.

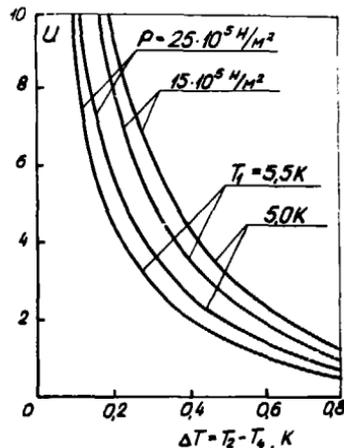


Рис. 11. Зависимость коэффициента инжекции от допустимого нагрева жидкого гелия ΔT . P_1 и T_1 - давление и температура перед эжектором.

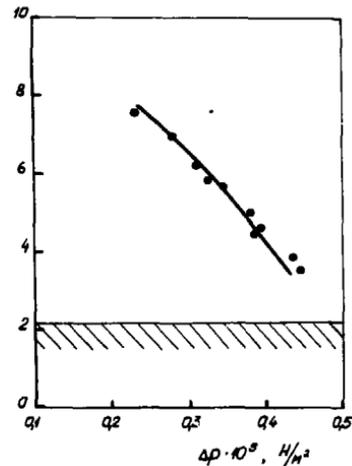


Рис. 12. Экспериментальная и расчетная характеристики струйного насоса. $Q = 200$ Вт; $G_1 = 28,6$ г/с; $P_1 = 19 \cdot 10^5$ Н/м²; $T_1 = 5,55$; $P_2 = 4 \cdot 10^5$ Н/м². Индексы соответствуют рис. 10.

объект. На рис. II приводится расчетная характеристика эжектора. На рис. I2 сравниваются расчетные и экспериментальные характеристики эжектора. Эксперимент проводился на стенде совместно с гелиевым рефрижератором холодопроизводительностью 240 Вт. Поток охлаждающей жидкости нагревался на $0,15 \pm 0,25$ К. В работе /5/ приводится таблица, позволяющая определить оптимальные размеры струйного насоса для различных случаев.

При сравнении систем охлаждения с помощью механического и струйного насосов следует учесть, что при струйном насосе нельзя использовать двухфазный детандер, что уменьшает эффективность рефрижератора. Расчет /5/ показывает, что при КПД механического насоса 0,5 КПД двухфазного детандера 0,7 и разность температур на входе и выходе охлаждающего потока 0,25 К. Применение струйного насоса дает перерасход энергии примерно 25%. С другой стороны, применение простого и дешевого струйного насоса, обладающего практически неограниченным сроком службы, взамен двух сложных машин дает значительные эксплуатационные выгоды и может, в конечном счете, оказаться экономически выгодным.

III. АВТОМАТИЗАЦИЯ ОЖИЖИТЕЛЬНЫХ УСТАНОВОК.

Возрастающие потребности в жидком гелии в ОИЯИ при постоянной численности эксплуатационного персонала привели к необходимости автоматизации ряда технологических операций на водородно-гелиевой ожижительной установке Института, оснащенной ожижителями дроссельного типа.

Автоматизированы прежде всего те операции, которые требуют постоянного внимания персонала при установившемся процессе ожижения газов: поддержание уровня жидкого азота в ваннах ожижителей и блоков очистки водорода и гелия /7/, поддержание уровня жидкого водорода в ванне вакуумного водорода гелиевого ожижителя, пополнение газгольдеров постоянного давления и закачка газов в ресиверы.

В связи с тем, что ожижительная установка является взрыво- и пожароопасной, в качестве средств автоматизации использованы стандартные устройства пневмоавтоматики (датчики, регуляторы и исполнительные механизмы) пневматической агрегатной унифицированной системы (АУС) и универсальной системы элементов промышленной пневмоавтоматики (УСЭПА).

Приборы пневмавтоматики обладают рядом преимуществ:

- 1) взрыво- и пожаробезопасность;
- 2) надежность в работе;
- 3) простотой устройства аппаратуры и ее обслуживания.

В результате разработки и внедрения схем автоматизации повышена стабильность работы операторов и блоков очистки водорода и гелия, резко облегчена работа эксплуатационного персонала, уменьшен численный состав смен.

Опыт эксплуатации схем пневмавтоматики в течение ряда лет подтвердил их высокую надежность.

Л и т е р а т у р а

1. J. Horlitz, S. Wolff, C. P. Patsch. The fourth International Conference on Magnet Technology, Brookhaven, 1972.
2. Н.Н. Агапов, В.А. Белушкин, А.Г. Зельдович. Исследование нерасчетных режимов гелиевого рефрижератора. Препринт ОИЯИ 8-9436, Дубна, 1976.
3. А.И. Агеев, В.Ф. Буринов, Д.В. Муратов, В.И. Приличников, Н.Б. Рубин. Экспериментальное исследование криогенной гелиевой установки ХТУ-250/4,5. Препринт ОИЯИ 8-10477, Дубна, 1977.
4. А.И. Агеев, В.А. Белушкин, А.Г. Зельдович, В.В. Крылов. Анализ процессов охлаждения и криостатирования крупных сверхпроводящих устройств. Препринт ОИЯИ Р8-10039, Дубна, 1976.
5. Н.Н. Агапов, А.И. Агеев, В.А. Белушкин, А.Г. Зельдович. О возможности криостатирования сверхпроводящих магнитных систем ускорителей с использованием струйных насосов для циркуляции жидкого гелия. Препринт ОИЯИ Р9-10760, Дубна, 1977.
6. Е.Я. Соколов, Н.М. Зингер. Струйные аппараты. Энергия. М., 1970.
7. Н.И. Баландиков, А.И. Иванов. Автоматическое регулирование уровня жидкого азота. Препринт ОИЯИ 8-9824, Дубна, 1976.

РАЗРАБОТКА ОСНОВНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ КРИОГЕННЫХ СИСТЕМ

В.Г.Пронько, Б.Д.Краковский (СССР)

Научно-производственное объединение гелиевой техники (Москва)

Показатели криогенной системы охлаждения различных устройств - энергоемкость, надежность работы, уровень обслуживания оператором определяются главным образом характеристиками основных её элементов:

- криогенной гелиевой установки (КТУ), генерирующей холод,
- узла транспортировки холода к потребителям.

Одним из плодотворных путей повышения энергетических показателей и надежности элементов, а также системы охлаждения в целом может быть совершенствование технологической схемы процессов (устройств). Ниже это будет показано на конкретном примере разработки установки КТУ-1600/4,5 и блока циркуляции жидкого гелия.

КТУ-1600/4,5 (Рис. 1) имеет проектную производительность 1750 Вт на уровне 3,8К при одновременном получении 45 л/ч жидкого гелия. Установка работает в различных режимах. Удельные затраты энергии с учетом холода, эквивалентного охлаждаемому гелию, составляют около 280 Вт/Вт, при этом удается одновременно облегчить условия работы машины и, следовательно, повысить надежность их работы. Высокие показатели получены благодаря решению установки на основе нового способа получения холода ^{/1/} и использованию отработанных узлов - детандеров, теплообменников и др.

Одно из основных требований к рефрижераторам для охлаждения крупных систем - ограничение удельных затрат энергии величиной 300+350 Вт/Вт может быть выполнено лишь с применением цикла, включающего жидкостный детандер ^{/2/}.

При использовании холода только на температурном уровне кипения криогенанта, как это происходит при охлаждении магнитов, в известном ^{/2/} цикле I-II-III-IV-VI-I на рис.2 на "холодном" конце теплообменника ступени охлаждения (СО) наблюдается существенная необратимость в процессе теплообмена. В точках II и IV температура может отличаться почти на 2К. Степень предварительного охлаждения (СПО) не рассматривается.

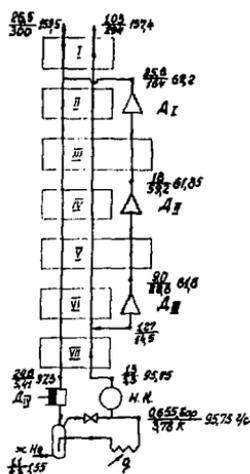


Рис. 1. Принципиальная технологическая схема КТУ-1600/4,5. Д-детандеры, Н.К.-нагнетатель криогенный, I+VII-теплообменники. Цифрами обозначены соответственно давление, расход и температура потока в данной точке.

Если для уменьшения разности температур провести процесс IV-V изэнтропического сжатия паров криоагента, то исключаются указанные внутренние потери, и новый цикл I-II-III-IV-V-VI-I теоретически приближается к обратимому циклу, состоящему из обратимого регенеративного цикла I-II-V-VI-I и цикла Карно II-III-IV-V-II.

Из рис.2 ясно, что новый цикл при той же холодопроизводительности отличается от известного меньшими затратами энергии /меньшей площадью в T-S диаграмме/. При $T_{II} = 4,2\text{K}$ в идеальных условиях затраты энергии в цикле I-II-III-IV-V-VI-I в 1,4 раза меньше, чем в цикле I-II-IV-VI-I. Другие преимущества нового цикла заключаются в том, что снята жесткая зависимость между температурным уровнем получаемого холода и давлением обратного потока в теплообменниках, что делает эффективным получение холода на уровне ниже 4K, в частности, при 1,5+2K. Для реальных величин эффективностей машин и аппаратов затраты энергии в рефрижерато-

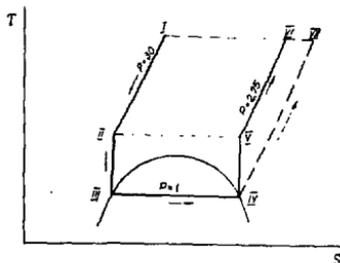


Рис. 2. Циклы получения холода.

рах на уровне 4,5К снижаются на 15+20%, на уровне 2,5К - на 70%, а на 1,8К - в два раза.

Процесс сжатия паров гелия с достаточно высоким КПД может осуществляться в криогенном нагнетателе турбинного типа. В КТУ-1600/4,5 применен нагнетатель центробежного типа, диаметр колеса 35 мм, рабочая частота вращения 865 с^{-1} . В качестве привода использована турбина мощностью 800 Вт, в которой гелий при нормальной температуре расширяется от 2 до 1,1 бар.

Для приведенных на рис.1 параметров технологической схемы значения эксергетических КПД ступеней и цикла составляют $\eta_e^{CO} = 80\%$, $\eta_e^{CPO} = 71\%$ и $\eta_e^U = 56,8\%$. Те же величины для схемы КТУ, производящей холод на уровне 4,5К, т.е. по известному циклу без процесса сжатия паров хладагента равны $\eta_e^{CO} = 67\%$, $\eta_e^{CPO} = 75\%$ и $\eta_e^U = 50,3\%$. Новый способ получения холода эффективнее в данном случае на 13%. Уменьшение преимуществ этого способа в реальных условиях по сравнению с указанными выше теоретическими объясняется потерями от неидеальности гелия и существенным отклонением процесса сжатия паров от извотропического.

Произведенное сравнение по затратам эксергии не учитывает, что в новом цикле эффективность и надежность турбодетандеров должна быть выше, т.к. увеличивается поток гелия через машины и снижается рабочая температура перед турбодетандерами. В пределах данного сообщения этот вопрос подробно не обсуждается.

Интересно качественно проиллюстрировать на конкретном примере взаимосвязь энергетических показателей и надежности.

В новом цикле снижены потери в СО, поэтому целесообразно снизить потери и в СПО. Из имеющихся возможностей был выбран вариант увеличения числа турбодетандеров с 2-х до 3-х. Поскольку одновременно производится заметное количество жидкого гелия, это повысило КПД цикла на $\sim 10\%$. Очень важно, что вместе с этим существенно улучшились условия работы турбодетандеров. В варианте с двумя машинами в СПО турбодетандер на уровне $T = 80\text{К}$ работает при большой извотропической разности энтальпий, расчетном числе оборотов 5800 с^{-1} и мощности 7 кВт. В этих весьма жестких условиях нельзя ожидать высокой надежности работы и приемлемого КПД турбодетандера. Замена одного детандера двумя /см.рис.1/ привела к снижению мощности и числа оборотов до освоенного уровня 3350 с^{-1} , при которых на практике достигнуты хорошие работоспособность и эффективность детандеров.

В дальнейшем, с развитием исследований надежности криогенного оборудования должны быть разработаны количественные зависимости для учета надежности при формировании критерия оптимальности КТУ и выборе оптимальной технологической схемы,

Конструктивно агрегат охлаждения КТУ-1600/4,5 выполнен из пяти отдельных блоков, полностью изготавливаемых и проверяемых на заводе. На месте монтажа блоки соединяются готовыми вакуумными трубопроводами.

В рабочем режиме установка может работать без постоянного обслуживания оператором. Основные параметры режима поддерживаются автоматически, машины защищены блокировками от аварий.

КТУ-1600/4,5 предназначена для комплектования криогенных систем охлаждения различных устройств.

Для решения актуальной задачи - повышения скорости циркуляции жидкого гелия через объект охлаждения при сохранении холодопроизводительности можно использовать имеющиеся резервы в шкеле КТУ.

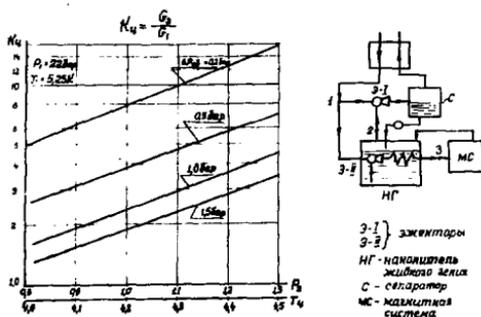


Рис. 3. Характеристика блока циркуляции жидкого гелия.

На рис.3 представлены схема и характеристика блока циркуляции жидкого гелия для КПЭ эжектора 0,2.

В этом блоке один эжектор используется для циркуляции, другой - для понижения температурного уровня получаемого холода. Уменьшение K_u с понижением температуры вызвано увеличением по-

тока на эжектор I. Оборудование изготавливается для работы с установкой производительностью 400 Вт на уровне 4,5К.

Аналогичное решение может быть использовано и для новых схем КГУ, в частности с жидкостным детандером.

ЛИТЕРАТУРА

1. В.Г.Пронько, Б.Д.Краковский и С.М.Корсаков-Богатков "Химическое и нефтяное машиностроение" Реф. сборник. М., ЦНТИХИМНЕФТЕМАШ, 1978, № I с. 26-28
2. Л.М.Столпер, Б.Д.Краковский и Е.В.Осносовский Экспресс-информация. Серия ХМ-6, № 10, с. 7-15 ЦНТИХИМНЕФТЕМАШ, 1975.

СКАНИРУЮЩИЙ АВТОМАТ ТИПА АЭЛТ-1 ДЛЯ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ И ПРИКЛАДНЫХ ЗАДАЧ

В. И. Шкуденков

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Разработка и применение сканирующих автоматов типа АЭЛТ-1^{1,2/} позволили исследовать проблему создания сравнительно простого и надежного, пригодного для использования в различных областях науки и техники автомата на электронно-лучевой трубке, предназначенного для измерения 35-мм фильмов (киноплёнок). Кроме того, проведение этих работ дало возможность провести исследования путей построения систем обработки на основе таких автоматов и использовать полученный при этом ценный опыт при создании мониторингового сканирующего автомата АЭЛТ-2/160^{3/}.

Функциональная схема и характеристики автомата

На рис. 1 приведена функциональная схема автомата АЭЛТ-1. Сканирование фотоснимков осуществляется методом "бегущего луча", путем просвечивания измеряемого снимка и регистрации с помощью ФЭУ моментов встречи светового пятна ЭЛТ с различными почернениями (следами ядерных частиц и др.) на нем. Световой луч на экране ЭЛТ перемещается по строкам, положением которых (номером) управляет ЭВМ. Отсчет координат осуществляется с помощью специальной системы реперных решеток, на которые с помощью полупрозрачных зеркал отделяется часть света от ЭЛТ. Коды начала и конца измеренных почернений передаются в управляющую ЭВМ на обработку. В процессе сканирования ЭВМ управляет уровнем дискриминации выходного сигнала в फिल्मовом канале.

Автомат имеет развитую систему средств диалога оператора с ЭВМ, которая используется в затруднительных для программы ЭВМ ситуациях на этапах измерения и распознавания измеряемых образов на снимках.

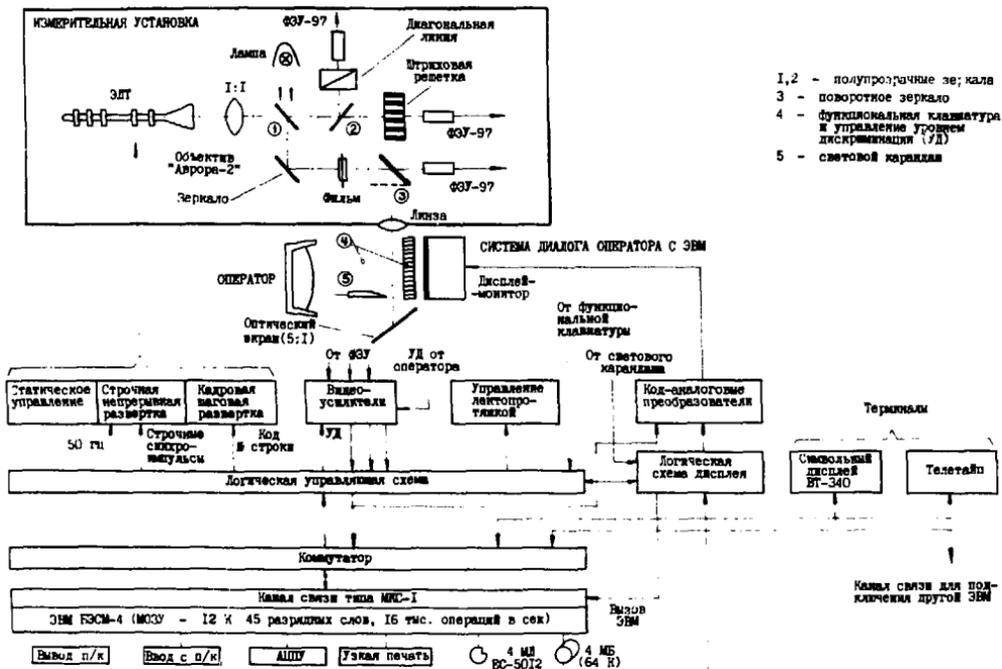


Рис. 1. функциональная схема реперно-мониторного сканирующего автомата АЛТ-1.

Размер обрабатываемых фотоснимков 26x19 мм, разрешающая способность 30 мкм, точность единичных измерений вдоль строчной развертки 15 мкм, вдоль кадровой развертки без специальной калибровки - 25-50 мкм. Максимальное число строк в растре 512. Число уровней дискриминации - до 256. Управляющая ЭВМ БЭСМ-4.

Характеристики автомата АЭЛТ-1М близки к указанным/2/.

Организация систем обработки

Центральными вопросами при организации систем обработки фотоснимков на основе использования сканирующего автомата являются достижение высокой эффективности и рентабельности его применения, а также сокращение сроков создания требуемого математического обеспечения.

Решение этих вопросов при создании систем обработки на автоматах АЭЛТ-1 и АЭЛТ-1М опиралось на использование гибкого оперетивного управления сканированием (управление каждой строкой) и наличие развитой системы средств диалога оператора с ЭВМ. Создание систем обработки проводилось в два этапа, причем на первом этапе ставилась задача в сжатые сроки за счет активного использования средств диалога построить высокоэффективную действующую систему и получить практический опыт ее эксплуатации, а на второй - поднять ее производительность, рационально используя силы разработчиков матобеспечения и полученный ими опыт. При этом при создании программ были разработаны методы распознавания образов, опирающиеся на возможности оперетивного управления сканированием. Была также выдвинута напередшая затем подтверждение гипотеза о том, что большая часть каждого из измеряемых образов принадлежит к простым фигурам и поэтому создание даже сравнительно несложных программ по их распознаванию позволяет уже на первом этапе создания системы, построенной по принципу "человек-ЭВМ" (с использованием средств диалога), достичь достаточно высокой производительности.

Изложенные принципы/4,5/ позволили существенно сократить сроки создания систем обработки и достичь практических результатов.

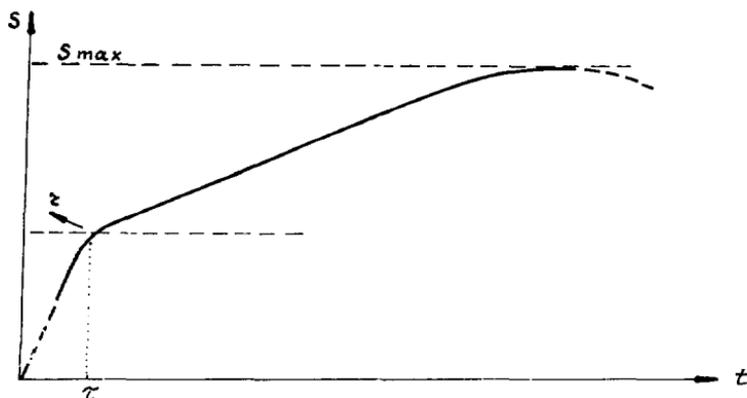


Рис. 2

Иллюстрация гипотезы о существовании критической точки z в графическом представлении зависимости производительности S строящейся системы обработки от затрат времени t на создание для сканирующего автомата математического обеспечения управления измерением и распознавания образов. Вектор-градиент z при этом показывает тенденцию в изменении точки $S(z)$ на графике в зависимости от увеличения гибкости в управлении сканированием и развития средств диалога оператора с ЭВМ.

Достигнутые результаты

1. На основе сканирующего автомата АЭЛТ-1 в ОИЯИ построена и эксплуатируется с 1973 года система обработки фотоснимков с широкоазимутной искровой камеры в эксперименте по исследованию вторичного электроорождения пионов. Треки на снимках имеют малую длину (1 мм), значительная часть треков имеет очень низкую контрастность. Производительность созданной системы обработки - 70 тысяч событий в год при односторонней работе. В период 1973-78 гг. измерено 250 тысяч событий, получены новые физические данные^{6,7/}.

2. В ЦАГИ (Москва) построен сканирующий автомат АЭЛТ-1М и создана система обработки экспериментальной полетной информации. Графики скорости, высоты и перегрузки, записанные в процессе по-

летов самолетов гражданской авиации на 35-мм киноплёнку, имеют большую длину (1-2 м) и обрабатываются частями по 19 мм каждая. Требуемая при этом обработка киноплёнок с одной установки достигается благодаря наличию у автомата развитой системы средств диалога оператора с ЭМ. Созданная система проверена при измерениях рабочих киноплёнок, получены физические результаты^{8,9/}.

В заключение отметим, что опыт создания и применения автоматов АЭЛТ-1 и АЭЛТ-1М показал возможность использования автомата данного типа в различных областях науки и техники. Наряду с исследованными направлениями он может найти широкое применение в медицине, биологии и в других областях, где требуется обработать экспериментальную информацию на 35-мм киноплёнках.

Литература:

1. Burov A.S. et.al. AELT-1 and AELT-2 CRT Scanning Devices. Oxford Conference on Computer Scanning. England, 1974.
2. Алакозля др. Реперно-мониторный сканирующий автомат АЭЛТ-1М. Труды 2-го Всесоюзного семинара по обработке физической информации. Брест, 1977. Изд-во БрПИ, 1978.
3. Баранчук М.К. и др. Мониторный сканирующий автомат АЭЛТ-2/160. Труды Семинара по обработке физической информации. Агверан, 1975. Изд-во БрПИ, 1976.
4. Шкунденков В.Н. Эффективность сканирующих автоматов. Труды 2-го Всесоюзного семинара по обработке физической информации. Брест, 1977. Изд-во БрПИ, 1978.
5. Шкунденков В.Н. ОИЯИ, Р10-11836, Дубна, 1978.
6. Ализаде В.В. и др. ОИЯИ, Р1-9478, Дубна, 1976.
7. Березнев С.Ф. и др. ОИЯИ, Р1-10311, Дубна, 1976.
8. Алакоз А.В. и др. а) ОИЯИ, Р10-10317, Дубна, 1976.
б) CERN, Trans. 77-06, Geneva, 1977.
9. Алакоз А.В. и др. Система автоматизированной обработки полетной информации. Труды 2-го Всесоюзного семинара по обработке физической информации. Брест, 1977. Изд-во БрПИ, 1978.

ПОСТРОЕНИЕ И АНАЛИЗ МОДЕЛИ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ СТРУКТУРЫ БЕЛКА
В РЕЖИМЕ ДИАЛОГА "ЧЕЛОВЕК-ЭВМ"

А.А.Карлов, Т.Ф.Смолякова, Г.Б.Щенкова

Объединенный институт ядерных исследований, Лубна

I. Введение

В последние годы большое внимание уделяется изучению структур молекул сложных соединений. Появление графических диалоговых систем предоставило исследователям гибкий инструмент для построения и анализа моделей сложных пространственных структур в режиме активного взаимодействия человека с ЭВМ. Сочетание вычислительных мощностей ЭВМ для проведения расчетов и построения сложных изображений с научной интуицией и творческими способностями человека для оперативного анализа получаемых результатов позволяет не только существенно ускорить по сравнению с традиционными методами процесс исследований, но и повысить их эффективность за счет появления принципиально новых возможностей анализа.

Данная работа проводилась в Лаборатории вычислительной техники и автоматизации ОИЯИ применительно к задаче построения и анализа модели белковой молекулы пепсина¹ и разделялась на три этапа:

1. Проведение в пакетном режиме на ЭВМ CDC-6500 расчетов для получения данных о картах электронной плотности и предварительных данных о пространственной структуре скелета молекулы; этот этап в данной работе не рассматривается.

2. Построение в режиме диалога модели пространственной структуры на основе данных, рассчитанных на первом этапе; при

этом использовалась удаленная дисплейная станция (УДС) /2/ ЭМ БЭСМ-6.

3. Анализ полученной модели /3/ на ЭМ CDC-I604A с использованием графического дисплея с целью изучения особенностей структуры молекулы.

2. Построение модели

Для построения модели молекулы в режиме диалога были созданы специальные программы для представления графической информации и организации взаимодействия "человек-ЭМ", а также использовалась существующая библиотека дисплейных подпрограмм на БЭСМ-6, в частности подпрограмма построения изолиний /4/ для изображения карт электронной плотности и их фрагментов.

Предварительный скелет молекулы вследствие неоднозначности интерпретации карт (на первом этапе) в некоторых частях может не удовлетворять исследователя. Графический диалоговый подход является эффективным средством при поиске оптимальной структуры молекулы.

Моделирование начинается с выбора координатной оси, вдоль которой будет осуществляться просмотр структуры молекулы, и поиска (путем просмотра) плоскости сечения, с которой целесообразно начать "подгонку" предварительного скелета к картам электронной плотности. Возможность подбора в режиме диалога начального уровня плотности и шага для изображения карт позволяет более эффективно выделить особенности структуры.

На основании просмотра полного изображения карты выбирается отдельный фрагмент для дальнейшего анализа. Затем изображения этого фрагмента для нескольких последовательных карт электронной плотности и изображение соответствующей части скелета молекулы совмещаются на экране. Далее на основании визуального анализа совмещенного изображения приступают к редактированию скелета, уточняя пространственное положение главной цепи молекулы, ее боковых ветвей и выделяя особенности структуры. По завершении работы с выбранной частью скелета информация о ней записывается в виде файлов для дальнейшего использования. После этого можно перейти к построению модели другой части молекулы в последовательном или в произвольном порядке.

В составе УДС имеется два графических дисплея. Один из них, регенеративного типа, используется для оперативного редактирования изображений. Другой, запоминающего типа, обладает практически неограниченной информационной емкостью экрана и высоким качеством изображения и поэтому используется для представления сложной графической информации (например, полного изображения одной или нескольких карт электронной плотности) и получения высококачественных фотокопий. Наличие двух разнотипных дисплеев оказывается весьма полезным в таком сложном процессе, как моделирование структуры молекулы.

3. Анализ модели

С точки зрения анализа полученной модели, комплекс программ, разработанный на CDC-1604A на основе развитой библиотеки дисплейных подпрограмм /5/, позволяет осуществлять построение на экране дисплея структуры молекулы и отдельных ее фрагментов, вращение полученного изображения в пространстве вокруг произвольной оси, получение стереопроекций и т.п.

В начале работы с клавиатуры пишущей машинки вводятся значения переменных, определяющие номера начального и конечного атомов для выводимого на экран фрагмента молекулы, шаг, с которым высвечиваются атомы фрагмента, способ выдачи изображения на экран (получение сразу полного изображения или обеспечение последовательного рисования молекулы на экране). После завершения ввода производится переход на подпрограмму, которая предназначена для построения на экране дисплея трехмерного изображения по топологии, задаваемой пользователем, и выполнения по приказам, которые вводятся пользователем с клавиатуры, однократных и непрерывных поворотов полученного изображения вокруг произвольной оси.

После завершения анализа с использованием поворотов трехмерного изображения можно указать характер дальнейшей работы, в том числе:

осуществить последовательное прослеживание заданного фрагмента молекулы относительно всего изображения с помощью специального маркера; получить стереопроекции для изображения, которое было сформировано ранее; пересопределить значение переменных,

которые задают режимы работы программы или завершить работу.

Последовательное прослеживание заданного участка молекулы на фоне всего изображения состоит в том, что подпрограммой реализована возможность наблюдать перемещение по этому участку специального маркера. Границы участка (фрагмента) и скорость движения маркера задаются с клавиатуры пишущей машинки.

Эффект восприятия наблюдателем пространственной структуры молекулы на плоском экране графического дисплея может быть получен с помощью пары двумерных стереопроекции. Проекция получается в результате проектирования атомов молекулы на выбранную плоскость относительно двух точек наблюдения (эквивалентных положению левого и правого глаза).

4. Заключение

Опыт использования рассмотренной методики при построении и анализе модели структуры пепсина показал, что она является достаточно универсальной, позволяет эффективно организовать процесс конструирования модели и последующее ее изучение, а также получать графический материал в виде фотографий, слайдов, кинофильма.

Авторы выражают благодарность члену-корреспонденту АН СССР, профессору Н.Н.Говоруну и профессору Н.С.Андреевой за полезные обсуждения, постоянный интерес и помощь в работе.

Литература:

1. Н.С.Андреева и др., ДАН, 228, № 2, стр. 224-227, 1976.
2. А.В.Кавченко и др., ОИЯИ, РЮ-9325, Дубна, 1975.
3. А.А.Карлов и др., ОИЯИ, РИ-9881, Дубна, 1976.
4. Г.Б.Щенкова, ОИЯИ, Ю-И1343, Дубна, 1978.
5. А.А.Карлов и др., ОИЯИ, Б1-И-6439, Дубна, 1972.

О ХИМИЧЕСКИ-ИНДУЦИРОВАННОЙ ВАРИАЦИИ КОНСТАНТЫ РАСПАДА ТЕХНЕЦИЯ-99М

К. Ветцель, Г. Бруннер, К.-Н. Досталь, Е. Гартманн, Д. Гиннебург,
Х. Куш, М. Нагель, Д. Пабст, А. Риге

Центральный институт изотопов и излучения, Лейпциг, ГДР

1. Введение

Уже в 50-х годах было экспериментально показано, что можно влиять на распад ядра Тс-99м. До нашего времени на изотопе технеций-99м и других изотопах измеряли эффекты химической окружности, давления и электрических полей, которые лежат в интервале от 10^{-5} до 10^{-3} /1,2/. Удовлетворительного количественного объяснения не было, поскольку непосредственной связи константы распада λ и плотности электронов в ядре не существует. В работе сообщается о новых результатах измерений химически-индуцированной вариации константы распада технеция-99м. Дано количественное объяснение результатов, обсуждается возможность их использования в структурно-аналитических исследованиях.

2. Вариация постоянной распада свободных ионов Тс-99м

На рис. 1 показана таблица абсолютных и относительных величин парциальных коэффициентов внутренней конверсии (КВК) для свободного атома технеция, рассчитанных на ЭВМ с помощью созданной в нашем институте программы для ЭВМ. Вкладами s-оболочек из-за характера E-3-перехода можно пренебречь, K- и L-конверсия энергетически запрещены, а валентная оболочка вносит вклад 1,2% в распад ядра. Вследствие большого общего ($1,39 \cdot 10^{10}$) значения КВК имеем:

$$\frac{\Delta \lambda}{\lambda} = \frac{\Delta \alpha}{\alpha} \quad (1)$$

Пользуясь соотношением

$$\alpha_i \sim |\Psi_i(R)|^2 \quad (2)$$

где R-радиус ядра, можно рассчитать КВК для ионизационных состояний.

При этом необходимо найти волновые функции отдельных оболочек исходя из релятивистских самосогласованных уравнений. С помощью программы для ЭВМ, разработанной Декло^{3/}, и соотношения (1) мы нашли зависимость относительных парциальных коэффициентов от степени ионизации (рис.2). Преобладающее влияние 4d-оболочки по сравнению с влиянием 4p-оболочки представляет собой эффект экранирования, который вызывает возрастание полного КВК с ростом степени ионизации (рис.3). Поэтому для соединений технеция с более высокой степенью окисления можно ожидать большую постоянную распада. Этот факт был установлен Вейнбриджем экспериментально для семивалентного пертехнета.

3. Влияние лигандов

Ожидаемое соотношение между константой распада и позицией лигандов в спектрохимической серии для октаэдрных комплексов технеция показано на рис.4. Возрастание параметра поля лигандов Δ по крайней мере частично обусловлено их способностью создать π -электроно-акцепторную связь^{5/}, вследствие чего с возрастанием Δ плотность электронов $t_{2g}(\pi)$ -уровня центрального атома должна понижаться. Поэтому для лигандов, которые в спектро-химической серии стоят правее, можно ожидать большую величину постоянной распада.

4. Методика измерений

Использовался принцип определения малых разностей констант распада двух источников (рис.5). Исследование обеих проб происходило попеременно в том же самом канале измерения. Исходя из экспериментально измеренной скорости счета $F(t)$, можно вычислить величину $\Delta\lambda$, пользуясь соотношениями:

$$F(t) = \frac{Z_1(t)}{Z_2(t+\Delta t)} = \frac{Z_1(0) e^{-(\lambda+\Delta\lambda)t}}{Z_2(0) e^{-\lambda t}} \quad (3)$$

$$F(t) \approx F(0) \{ 1 - \Delta\lambda \cdot t \} .$$

Длительность отдельного измерения составляет 9,8 мин., время смены проб 0,2 мин, полное время измерения равняется $2/\lambda = 17$ ч. Регистрировали 140-кэВ вторичное излучение 2-каВ перепада с помощью сцинтиллирующего кристалла из $NaJ(Te)$ при низком

пороге дискриминации. При начальной скорости счета $8 \cdot 10^4 \text{ с}^{-1}$ соответственно статистике скорости счета стандартное отклонение имеет значение $\delta(\Delta\lambda/\lambda) = 5 \cdot 10^{-5}$. Преимущество данного метода состоит в том, что ошибки счета, обусловленные имеющимися в аппаратуре погрешностями, компенсируются, так как используется отношение скоростей счета. То же самое имеет место и для ошибок, связанных с фоном от других изотопов, если их концентрации в обоих пробах равны. Так как само по себе это условие не всегда выполняется, необходима была соответствующая подготовка вещества, используемого в качестве проб. Начальное вещество технеций-99m-пертехнетат получали на технециевом генераторе ИИИИ. Очистка от мешающих изотопов осуществлялась по методу Траутмана /6/ посредством экстракционной хроматографии с помощью ТРАС (тетрафениларзониумхлорид) на хромосорбе. Синтез $^{99m}\text{Tc} \text{ J}_6^{2-}$ и $^{99m}\text{Tc} \text{ Br}_6^{2-}$ происходил путем восстановления с помощью принадлежащих концентрированных галогеноводородных кислот, а $^{99m}\text{Tc} \text{ Ce}_6^{2-}$ получали восстановлением с SnCe_2 в концентрированной соляной кислоте. Проверкой надежности метода измерений служило сравнение данных для одинаковых проб. После 21-го измерения для систематической погрешности среднего значения получаем: $\delta(\Delta\lambda/\lambda) = (-3 \pm 3) \cdot 10^{-5}$.

5. Результаты и их обсуждения

Экспериментальные и теоретические результаты показаны на рис.6, где значения с указанием ошибок - экспериментальные, значения без указания ошибок - теоретические, λ_0 - константа распада свободного атома технеция. Теоретические значения рассчитаны исходя из (2), причем величины $|\Psi_i(\alpha)|^2$ для исследуемых соединений вычислялись с помощью специального МО-способа $\chi_{\alpha}^2\text{-SW-MT}$ /8/. Видно, что теоретические значения подтверждают сформулированную в разделе 3 гипотезу (спектро-химическая серия). Измеренные значения хорошо согласуются с теорией, за исключением случая $\text{Tc} \text{ Ce}_6^{2-} / \text{Tc} \text{ Br}_6^{2-}$. Причина расхождения, по-видимому, заключена в хлоро-комплексе, поскольку для $\text{Tc} \text{ Br}_6^{2-}$ измеренное значение совпадает с теоретически ожидаемым. Выполненные нами спектрофотометрические исследования наряду с этим показали, что соединения хлора неустойчивы. Эти исследования неокончены. Большую величину константы распада пертехнетата по сравнению с другими веществами невозможно объяснить в рамках спектрохимической серии, в основном она обусловлена повышенной степенью окисления. На р. 7

изображена зависимость теоретических и экспериментальных значений λ от теоретической степени ионизации:

$$I_d = -5 \frac{\Delta |\psi_{4d}(R)|^2}{|\psi_{4d}(R)|^2} \quad (4)$$

Эта зависимость приближительно линейна. Действительно, соединение формально с самой высокой степенью окисления имеет и самую большую теоретическую $4d$ -делокализацию. Однако большое значение обуславливается не только этим, а и, как показывают подробные расчеты, многими другими структурными параметрами, определяющими отличие этого соединения от галогенных комплексов.

6. Выводы

Полученные результаты могут быть практически использованы, например:

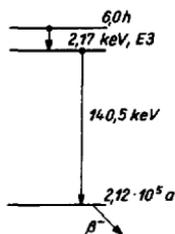
- Используя показанную на рис.7 связь между вариацией константы распада и $4d$ -делокализацией, можно получить данные о характере валентности и для других соединений.

- Зависимость постоянной распада от присутствия лигандов можно использовать в качестве индикатора для обнаружения замены лигандов.

- Рассмотренные эффекты смогут быть особенно полезны для выяснения свойств соединений технеция в свободной от носителей области концентрации, так как для исследований в этой области существует весьма малое число методов анализа, исключительно хроматографического рода.

Литература:

1. Эмери Г.Т. Ann. Rev. Nucl. Sci. 22 (1972) 165.
2. Досталь К.-П. и др. Z. Naturforsch. 32a (1977) 345.
3. Декло Ж.П. J. P. Comp. Phys. Comm. 9 (1975) 31.
4. Бе"нбридж К.Т. и др. Phys. Rev. 84 (1951) 1260.
5. Месбауер Р.Л. Angewandte Chem. 83 (1971) 524.
6. Травтман Н. и др. Radiochem. Acta 18 (1972) 86.
7. Джонсон К.Г. Adv. Quant. Chem. 2 (1972) 143.



$4d^{22} 4d^1 5s^2$

i	α_{ig}	α_{ig}/α
$3p^{22}$	$3,29 \cdot 10^8$	0,236
$3p^4$	$5,82 \cdot 10^8$	0,419
$3d^{20}$	$1,25 \cdot 10^9$	0,090
$3d^2$	$1,88 \cdot 10^8$	0,135
$4p^{22}$	$5,48 \cdot 10^8$	0,039
$4p^4$	$9,57 \cdot 10^8$	0,069
$4d^{24}$	$1,36 \cdot 10^9$	0,010
$4d^2$	$3,09 \cdot 10^7$	0,002
Σ	$1,39 \cdot 10^{10}$	1,000

$$\lambda = \lambda_{\gamma} (1 \cdot \alpha)$$

$$\frac{\Delta \lambda}{\lambda} = \frac{\Delta \alpha}{1 \cdot \alpha} \approx \frac{\Delta \alpha}{\alpha} \quad (1)$$

$$\alpha_i \sim |\psi(R)|^2 \quad (2)$$

Рис. 1

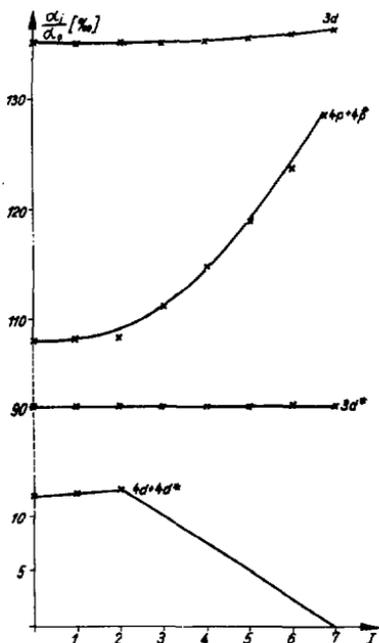


Рис. 2. Зависимость парциальных относительных КВК от степени ионизации I . $I = 7 - n_{5s} - n_{4d}$, α_0 - полный КВК свободного атома Tc .

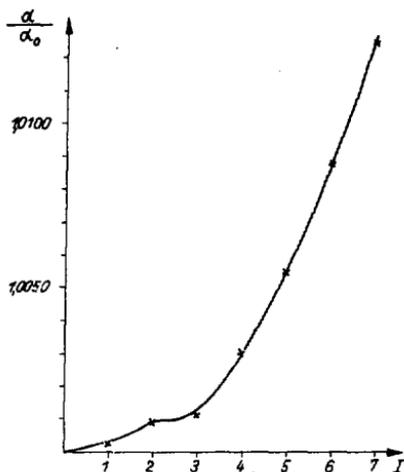
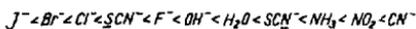


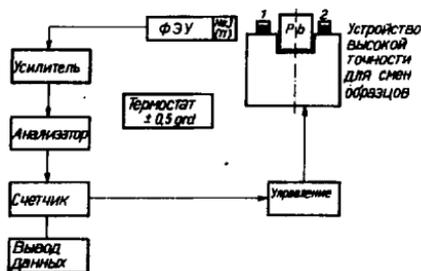
Рис. 3. Зависимость полного КВК $Tc-99m$ от степени ионизации.



Спектрохимическая серия



Рис. 4. Константа λ распада $Tc-99m$ и спектрохимическая серия.

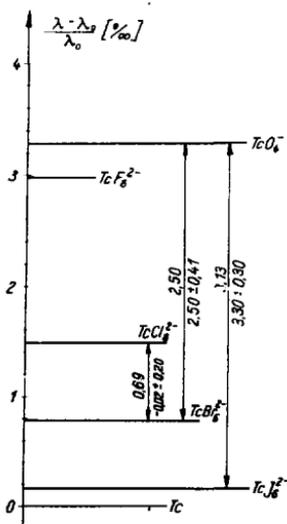


$$F(t) = \frac{Z_1(t)}{Z_2(t)} = \frac{Z_1(0)e^{-(\lambda + \Delta\lambda)t}}{Z_2(0)e^{-\lambda t}} \quad (3)$$

$$F(t) \approx F(0) \{1 - \Delta\lambda t\}$$

Рис. 5. Принцип измерения изменения константы распада $T_c - 99m$.

Рис. 6. Сводка экспериментальных и теоретических значений изменения константы распада $T_c - 99m$ вследствие химического окружения.



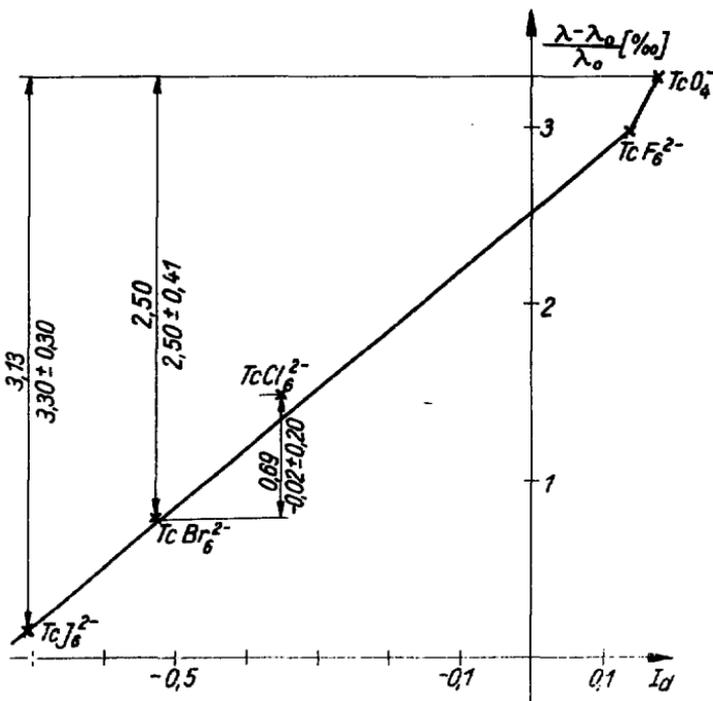


Рис. 7. Зависимость изменения константы распада $Tc-99m$ от величины

$$I_d = -5 \frac{\Delta|\psi_{ud}(R)|^2}{|\psi_{ud}(R)|^2} \Big|_{X_{\alpha-SW-MT-SCF}}$$

λ_0 - константа распада свободного атома $Tc-99m$.

ИССЛЕДОВАНИЕ СОБСТВЕННОЙ РАДИОАКТИВНОЙ ЗАГРЯЗЕННОСТИ РАЗЛИЧНЫХ
ЕСТЕСТВЕННЫХ И ИСКУССТВЕННЫХ МАТЕРИАЛОВ В ПОДЗЕМНОЙ НИЗКОФОНОВОЙ
КАМЕРЕ

Е.Л.Ковальчук, А.А.Поменский, А.А.Смольников, А.Х.Темноев
Институт ядерных исследований Академии наук СССР, Москва

Мы живём в море ионизирующих излучений. Их происхождение обязано двум источникам: космическим лучам, поток которых приходит из верхней полусферы, и естественной радиоактивности, пронизывающей нас со всех сторон. В этом море скрыты некоторые тонкие эффекты физики элементарных частиц, ядерной физики и прикладных направлений. Так, например, из-за радиационного фона мы не знаем, насколько далеко игостируются законы сохранения электрического и лептонного зарядов. Мы подозреваем, что в природе могут существовать сверхплотные и сверхтяжёлые ядра, но предел на их концентрацию опять-таки определяется фоном ионизирующих излучений. Некоторые важнейшие эксперименты современной физики не могут быть поставлены, поскольку для их осуществления необходимо снизить радиационный фон как самих детекторов, так и окружающих материалов в миллионы раз, в то время как на сегодняшний день мы имеем опыт снижения этого фона лишь в тысячи раз. Речь, в частности, идёт об электронном детектировании солнечных нейтрино, эффективная энергия которых (нейтрино от распада ${}^8\text{B} \rightarrow {}^8\text{Be} + e^+ + \nu$) близка к 8 МэВ. И хотя интенсивность потока фоновых γ -квантов такой энергии в миллионы раз меньше интенсивности потока γ -квантов "обычной" радиоактивности от ${}^{40}\text{K}$ и рядов ${}^{238}\text{U}$ и ${}^{232}\text{Th}$, простирающегося до энергий около 3 МэВ, она в то же время в миллионы раз больше той величины потока, которая позволяет непосредственно наблюдать взаимодействия солнечных нейтрино. Представление о происхождении радиационного потока γ -квантов больших энергий можно получить из таблицы I, взятой нами из работы^{1/}. Следует подчеркнуть, что хотя в этой работе в качестве излучающей породы был взят гранит, форма спектра радиацион-

ных γ -квантов примерно одинакова для любой горной породы, а интенсивность их потока определяется концентрацией ^{238}U и ^{232}Th и их дочерних продуктов.

ТАБЛИЦА I

Скорость генерации γ -квантов в сутки в грамме гранита среднего химического состава, делённая на концентрацию ^{238}U , выраженную в граммах урана-238 на грамм гранита (концентрация ^{232}Th в 5 раз превышает концентрацию ^{238}U).

Реакция $\Delta E \gamma$	4 - 5	5 - 6	6 - 7	7 - 8	8 - 9	9 - 10
Спонтанное деление	52,2	21,3	9,0	2,3	-	-
$\alpha \gamma$	0,2	0,01	0,15	0,21	0,28	0,05
$\alpha n \gamma$	366	155	31	2,8	3,6	1,3
$\alpha p \gamma$	2236	1075	535	243	14,3	0,06
$n \gamma$	4000	1840	1840	554	554	47
$pn \gamma$	8,2	3,3	39	1,2	0,6	0,24

Избавиться от фона космических лучей можно либо с помощью активной защиты, т.е. системы антисовпадений (таким путём удаётся снизить фон примерно на три порядка величины), либо посредством заглубления экспериментальных установок. При достаточной глубине подавление мюонного фона может быть практически абсолютным, если не принимать во внимание поток, определяемый взаимодействиями мюонных нейтрино, образуемых в атмосфере Земли при распаде мезонов.

Что же касается радиационного фона, то здесь проблема значительно сложнее, поскольку имеющаяся на сегодняшний день методика позволяет дифференцировать различные материалы по содержанию в них радиоактивных примесей, если количество последних отличается не более чем в несколько сот раз.

Данная работа посвящена поискам методов идентификации ультранизких активностей, которые развиваются в Институте ядерных исследований АН СССР для решения задач нейтринной астрофизики и некоторых других фундаментальных и прикладных исследований.

С самого начала наших работ нам казалось, что развитие методики низкофоновых исследований должно идти по пути поиска широко распространённых и поэтому дешёвых природных материалов с

возможно меньшим содержанием урана, тория и калия и использовании этих материалов для экранирования больших лабораторных помещений. Выбор был остановлен на ультраосновных горных породах. В таблице II представлено относительное содержание элементов в породах различного типа.

ТАБЛИЦА II
Химический состав наиболее представленных пород (доля по весу)

Порода Элемент	Хондриты	Ультраосновные	Базальты	Граниты
O	0,350	0,4057	0,3848	0,4432
Na	0,0068	0,0040	0,0166	0,0286
Mg	0,144	0,1997	0,0465	0,0067
Al	0,013	0,0119	0,0907	0,0909
Si	0,178	0,1821	0,1949	0,3008
K	0,0009	0,0017	0,0116	0,0469
Ca	0,014	0,0284	0,0938	0,0259
Mn	0,002	0,0048	0,0257	0,0025
Fe	0,251	0,1612	0,1355	0,0540
Th	4×10^{-8}	5×10^{-9}	$2,5 \times 10^{-6}$	15×10^{-6}
U	$1,5 \times 10^{-8}$	3×10^{-9}	6×10^{-7}	5×10^{-6}

Из данных таблицы II видно, что ультраосновные породы в тысячи раз чище гранитов по содержанию урана и тория и в десятки раз по содержанию калия.

В качестве опытной установки - макета низкофоновой лаборатории была построена подземная низкофоновая камера^{12/} Баксанской нейтринной обсерватории Института ядерных исследований АН СССР. Камера расположена на высоте 1700 м над уровнем моря и экранирована от космических лучей слоем горной породы, равным 680 м водного эквивалента. Фронтальный разрез камеры представлен на рис. I. Как видно, основное рабочее помещение камеры, находящееся на первом этаже (второй этаж, соединённый с первым кабельным каналом, предназначен для размещения электронной аппаратуры) экранировано от окружающей горной породы, близкой по составу к граниту, слоем низкорadioактивного бетона толщиной 50 см и слоем щебня из ультра-

основной породы - дунита, также толщиной 50 см. Низкорadioактивный бетон состоит из дунита в качестве инертного материала и обычного портланд-цемента в качестве вяжущего материала. Собственная радиоактивность этого бетона определяется радиоактивной загрязненностью портланд-цемента, которая лишь в несколько раз меньше, чем таковая у гранита.

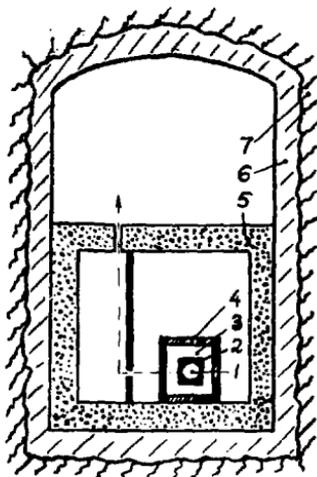


Рис.1. фронтальный разрез подземной низкофоновой камеры: 1 - NaI(Tl) детектор, 2 - вольфрам, 3 - оргстекло, 4 - медь, 5 - дунитовый щебень, 6 - низкорadioактивный бетон, 7 - окружающая горная порода (кристаллические сланцы).

Внутреннее помещение первого этажа обшито стальным листом толщиной 0,8 см. Пунктиром показан кабельный канал, проходящий через стальную перегородку толщиной 10 см и через слой дунитового щебня

Каждый из двух экранирующих слоёв снижает поток фоновых γ -квантов радиоактивности примерно в 15 раз. Таким образом, общее снижение γ -фона в камере было более чем в 200 раз. Имеется в виду интегральный поток с энергией $E_{\gamma} > 90$ кэВ. Фоновые характеристики камеры исследовались в работе [3].

Как видно из рис.1, внутри камеры была смонтирована дополнительная защита от окружающей радиации, состоящая из меди, оргстекла и вольфрама, который, как показали наши измерения, является наиболее чистым из металлов по радиоактивной загрязненности.

В качестве детекторов мы использовали сцинтилляционные кристаллы NaI(Tl) специального приготовления, конструкция которых представлена на рис.2а и 2б. Один из детекторов диаметром и высотой по 200 мм имел колодец диаметром и высотой по 100 мм для помещения в него измеряемых образцов. Вес этого детектора - 22 кг.

Этот детектор служил для измерений образцов предположительно не очень чистых по радиоактивной загрязнённости. Образцы, вес которых был 500 г, помещались в колодец примерно в одинаковой геометрии. Контейнер этого детектора сделан из нержавеющей стали. Отражателем света является окись магния. Окно детектора сделано из оптического кварца толщиной 40 мм и диаметром 200 мм. Такое окно не увеличивает полный фон детектора и в то же время уменьшает фоновое излучение фотомножителя (ФЭУ-49) почти в два раза.

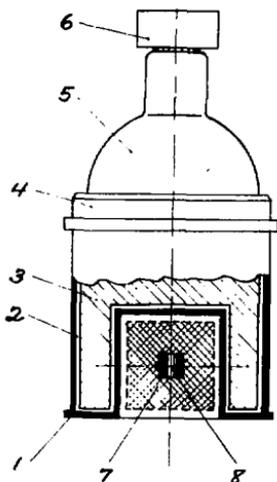
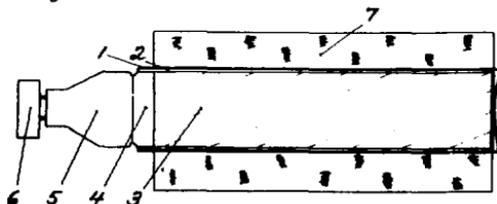


Рис.2 Конструкционные особенности сцинтилляционных детекторов NaI(Tl) №1 и №2.

1 - контейнер, 2 - отражатель, 3 - aI(Tl) , 4 - окно из оптического кварца, 5 - фотомножитель, 6 - делитель, 7 - образец для измерения (любой для детектора №2 и малой плотности для детектора №1), 8 - образец с большой плотностью при измерении в детекторе №1.

← а - NaI(Tl) №1

б - NaI(Tl) №2



Собственный радиационный фон детектора №1 не позволяет проводить измерения очень чистых материалов, например ряда пластмасс и металлов. Поэтому мы использовали для этих материалов другой, специально изготовленный детектор NaI(Tl) №2, имеющий длину

400 мм, диаметр 70 мм и вес 7,5 кг. Этот детектор, показанный на рис.2б, имеет отражатель света из тефлона, контейнер из нержавеющей стали и кварцевое окно толщиной 20 мм и диаметром 70 мм. Собственный фон детектора №1 в интервале 90-3000 кэВ составляет 5,7 имп/с, а детектора №2 в том же энергетическом интервале - 0,68 имп/с. Энергетическое разрешение пика ^{137}Cs (662 кэВ) для детекторов №1 и №2 равно соответственно 12% и 11%.

На рис.3 представлены спектры γ -фона строительных материалов, использованных при сооружении подземных объектов Баксанской нейтринной обсерватории. Измерения проводились детектором №1. Поскольку γ -фон большинства представленных на рис.3 образцов значительно выше собственного фона детектора №1 (см. данные таблицы III), мы сочли целесообразным представить спектры рис.3 без вычитания фона, который представлен на этом рисунке самым нижним спектром.

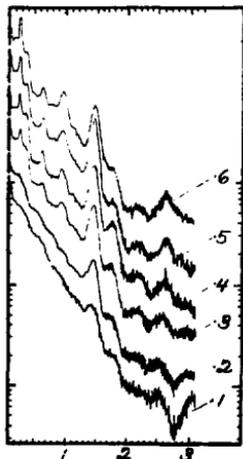


Рис.3 Спектры γ -фона строительных материалов (0,5 кг образца помещённые в колодец детектора №1) и собственный γ -фон детектора №1.

- 1 - собственный фон детектора №1,
- 2 - сверхнизкорadioактивный бетон,
- 3 - низкорadioактивный бетон,
- 4 - портланд-цемент,
- 5 - обычный бетон,
- 6 - горная порода (кристаллические сланцы).

По оси абсцисс отложена энергия (МэВ).

Хотя для всех спектров масштаб оси ординат логарифмический, их сдвиг по этой оси произвольный, учитывающий лишь возрастание активности образцов от спектра №1 к спектру №6. Сверхнизкорadioактивный бетон, включающий втулочные с низкой собственной активностью, описан в работе¹⁴. Статистическая обеспеченность каждого спектра одинакова (10^6 импульсов в интервале 90-3000 кэВ).

Казалось бы, что последнее обстоятельство должно приводить к примерно подобной форме всех спектров с более или менее одинаковым проявлением отдельных пиков. В действительности этого не наблюдается. Мы видим, что при переходе от спектра 6 к спектру I сильно изменяется его участок с энергией $E > 2,4$ МэВ. Это объясняется тем, что по мере понижения активности исследуемых образцов всё больший относительный вклад в наблюдаемый спектр дает собственное излучение детектора. В частности, указанное изменение спектра I по сравнению со спектром 6 в области больших энергий объясняется вкладом α -частиц и каскадов γ -квантов от распада ThC'' , спектр которых отчетливо проявляется благодаря крайне низкому фону γ -излучения, приходящего на детектор извне, что связано с уникальными фоновыми условиями нашей подземной камеры и радиационной чистотой вольфрама, окружающего детектор.

Далее, при $E < 2,4$ МэВ наблюдается сглаживание спектра по мере снижения активности образцов. "Размазывание" за счет долгой экспозиции исключено, т.к. постоянная калибровка детектора источником ^{137}Cs показывала стабильность работы всей аппаратуры. Этот эффект объясняется практически полным отсутствием фона внешнего γ -излучения по сравнению с собственным фоном детектора. А в спектр собственного фона, кроме γ -линии, даёт вклад также и соответствующий этой линии β -спектр, который из-за возможности выхода γ -квантов из кристалла является даже более представленным, чем γ -пики. Это и приводит к наблюдаемому сглаживанию спектра. Совокупность энерговыделений β -спектра и γ -линии слегка искажает также спектр при энергии $E > 2,4$ МэВ. Т.о., мы можем эффективно контролировать собственный фон детекторов NaI(Tl) .

Практические результаты анализа рис.3 и табл. III указывают, что использование бетонов на основе ультраосновных горных пород для строительства физических лабораторий может существенно облегчить проведение некоторых тонких экспериментов, требующих ультранизкого радиационного фона. Это безусловно оправдано в случае подземных лабораторий, где снижен фон космических лучей. Не исключено также, что изготовление бетонных конструкций на основе ультраосновных пород целесообразно также для строительства жилых и общественных зданий. Это привело бы не только к уменьшению радиационного γ -фона в этих помещениях, но и снизило бы концентрацию радона в воздухе, что, по-видимому, немаловажно для профилактики радиационной безопасности.

Среди материалов, γ -активность которых была измерена с помощью детектора №1, для данного доклада наибольший интерес представляют материалы, часто используемые при создании экспериментальных установок. Результаты измерения γ -активности некоторых из них представлены на рис.4 (см. также таблицу III).

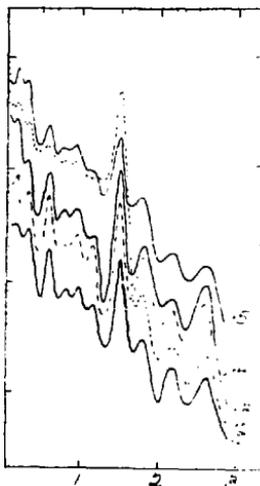


Рис.4 Спектры собственного γ -фона некоторых материалов, часто используемых при сооружении экспериментальных установок. Собственный фон сцинтилляционного детектора NaI(Tl) №1, с помощью которого проводились измерения, вычитался.

- 1 - свинец,
- 2 - фотоумножители,
- 3 - трансформаторное железо,
- 4 - алюминий,
- 5 - резисторы.

По оси абсцисс отложена энергия (МэВ).

Как и в случае строительных материалов, 0,5 кг каждого образца помещалось в колодец детектора №1. Однако в отличие от строительных материалов, γ -спектры которых были довольно подобны, в данном случае мы замечаем большое разнообразие в спектрах. Так, фотоэлектронные умножители, имея очень небольшую загрязненность элементами уран-ториевых рядов ($E_{\gamma} > 1,5$ МэВ), содержат рекордное количество ^{40}K , что, в общем, естественно для стеклянных изделий. Мы не дифференцируем здесь различные типы фотоумножителей. Это будет сделано в другой работе. Следует, однако, подчеркнуть, что из наших измерений собственного радиационного фона различных отечественных фотоэлектронных умножителей можно сделать вывод, что в последние годы качество стекла, используемого для их производства, существенно повысилось с точки зрения уменьшения количества радиоактивных примесей. Также мы не дифференцировали различные резисторы по их типам. Кривая 5 соответствует типу ЖГ.

Как говорилось выше, собственный фон детектора №1 не позволяет проводить измерения загрязнённости целого ряда материалов. В этих случаях использовался детектор №2, который помимо более низкого собственного фона обладает преимуществом за счет вытянутой формы, что позволяет равномерно обкладывать его исследуемым материалом и проводить измерения с количеством вещества, значительно большим, чем 0,5 кг (стандартного для детектора №1). Масса наиболее чистых образцов была равна массе самого детектора №2 или даже превышала её. Геометрический фактор вычислялся в каждом отдельном случае и для различных образцов менялся от 0,2 до 0,5. Результаты измерений, приведённые к массе образца 1 кг, с вычтенным собственным фоном детектора №2 представлены на рис.5 и 6. Измерения велись до набора числа импульсов $I, I \times 10^5$ для всех образцов в интервале 90-3000 кэВ. Поэтому статистические ошибки всех измерений равны (0,3%).

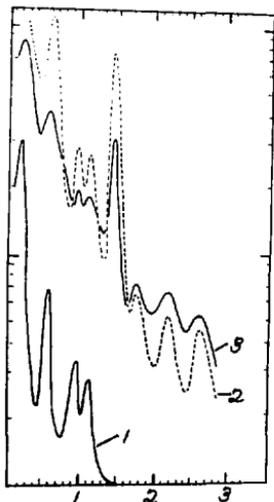


Рис.5

γ -спектры некоторых материалов.

1 - тефлон, 2 - дерево, 3 - сталь.

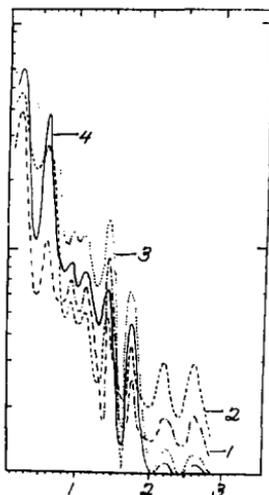


Рис.6

γ -спектры ряда сцинтилляционных материалов.

1 - пластический сцинтиллятор на основе оргстекла, 2 - пластический сцинтиллятор на основе полистирола, 3 - CsI(сырьё), 4 - NaI(сырьё).

Результаты измерений, представленных на рис.5 и 6, по интегральной скорости счёта в интервале 90-3000 кэВ даны в таблице III.

ТАБЛИЦА III

Интегральная γ -активность различных материалов (имп/кг·с)

NaI(Tl) №1	NaI(Tl) №2	Горная порода	Обычный бетон	Портланд цемент	Низкорад. бетон	Сверхниз- корад. бет.
0,26	0,09	518	151	69,6	21,2	5,3
Свинец	Трансф. железо	Алюмин.	Дюраль	Резистор	ФЭУ	Тефлон
0,59	0,88	3,69	1,67	35,2	39,3	0,02
Дерево	Сталь	Шлексигл. сцинтилл.	Полистир. сцинтилл.	NaI сырьё	CaI сырьё	
0,94	0,07	0,05	0,11	0,09	0,11	

Анализ представленных результатов показывает, что использованный метод поиска чистых по радиоактивной загрязнённости материалов может быть значительно более эффективным, если мы сумеем повысить радиационную чистоту сцинтилляционных детекторов. Критерием для суждения о собственной загрязнённости детекторов NaI(Tl) элементами уран-ториевых рядов может служить спектр импульсов в области энергий, превышающих 3 МэВ, хорошо видимый в ультранизкофоновых условиях нашей подземной камеры. Дифференциация сцинтилляционного сырья, использованного для сцинтилляторов NaI(Tl) с различным собственным α -фоном, может служить путём к созданию детекторов с рекордно малой загрязнённостью α -активными элементами.

Авторы благодарны Л.Л.Налочной за изготовление оригинальных детекторов NaI(Tl) и предоставление образцов сцинтилляционного сырья.

Литература

1. В.И.Глотов, Атомная энергия, 30, 384 /1971/.
2. Г.Т.Зацепин и др. Краткие сообщения по физике, №6, 20 /1975/.
3. В.И.Алёшин и др. Препринт ИАЭ-2697 /1976/.
4. И.А.Аршинов и др. Труды международной конференции по измерениям малых активностей (ЧССР 1975), Братислава, 1977, стр.29.

Рукопись поступила в издательский отдел
8 января 1979 года.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований.
Заказ 26693. Тираж 350. Уч.-изд. листов 22,74.
Редактор Е.Л.Семенова.
Макет Н.А.Киселевой. Подписано к печати 27.6.79 г.