

РАЗВИТИЕ ТЕХНОЛОГИИ ПОЛУЧЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ И АНАЛИТИЧЕСКИХ МЕТОДОВ МИКРОЭЛЕМЕНТНОГО АНАЛИЗА

Н.М. Бердинова, А.М. Князев, С.Н. Лукашенко,
Г.И. Сычиков, Т.И. Таурбаева, Г.Н. Чумиков

Институт ядерной физики НЯЦ РК

ВВЕДЕНИЕ

В марте 1985 года на базе группы лаборатории радиохимии из 4-х сотрудников была организована лаборатория радиоактивных изотопов, которую возглавил кандидат химических наук Кочетков В.Л. В 1986 году в состав лаборатории входило 4 группы (технологическая, аналитическая, физическая и биологическая) общей численностью 15 сотрудников.

Перед лабораторией были поставлены задачи по разработке новых и адаптации существующих технологий получения радиоактивных изотопов с целью организации их производства на основных установках института: атомном реакторе и изохронном циклотроне.

Как известно, радиоактивные изотопы находят применение в различных сферах человеческой деятельности. Они используются в основном по трем направлениям:

- в качестве радиоактивных индикаторов (метод меченых атомов);
- в виде источников проникающих излучений в радиоизотопных приборах для автоматического контроля и регулирования технологических процессов;
- в качестве мощных источников ионизирующих излучений для непосредственного воздействия на вещество с целью инициирования в нем различных реакций и преобразования структуры.

В медицине радиоизотопы применяются в диагностических целях, для лечения и для стерилизации инструментов и принадлежностей. Введение в организм человека небольшого количества вещества, содержащего радиоактивную метку, открывает уникальную возможность контролировать с помощью внешних регистрирующих детекторов движение этого вещества, его накопление и распределение в том или ином отделе человеческого тела. Диагностические исследования на основе использования радиоактивных изотопов получили общее название — ядерная медицина, или радиоизотопная диагностика, а сами радиоизотопы и меченые ими соединения — радиофармпрепаратов (РФП).

На практике для получения радиоактивных изотопов (РИ) используются ядерные реакции с нейтронами или заряженными частицами (дейтонами, протонами и альфа-частицами). Большое количество РИ — продуктов деления выделяют из отходов от регенерации ядерного горючего. С помощью ядерных реакторов получают 70% всех РФП, используемых в медицинской диагностике и медицинских исследованиях.

Однако некоторые РИ и РФП либо не могут быть получены на ядерных реакторах, либо их производство этим путем неэффективно. Это нейтрондефицитные РИ, которые образуются в реакциях с заряженными частицами.

Обычно их получают на циклотронах как наиболее сильноточных ускорителей частиц. Преимуществом и важной особенностью циклотронных РИ является то, что они, имея другую химическую природу, отличную от материала мишени, могут быть выделены из последней в виде РИ "без носителя", т.е. в таком виде, когда почти все атомы данного изотопа являются радиоактивными. Вследствие этого препараты циклотронных изотопов отличаются более высокой удельной активностью и радиоизотопной чистотой по сравнению с реакторными. В настоящее время на циклотронах производятся изотопы в 40 странах мира. Процесс получения РИ и РФП можно разбить на следующие пять этапов:

1. Выбор подходящей мишени и режима ее облучения.
2. Подготовка мишени и облучение ее на реакторе или на циклотроне.
3. Переработка облученной мишени и приготовление нужного соединения или препарата.
4. Анализ, измерение, биологический контроль (при необходимости) и паспортизация готового препарата.
5. Расфасовка и упаковка препарата для отправки к месту использования.

1. НАУЧНЫЕ ДОСТИЖЕНИЯ ЛАБОРАТОРИИ

1.1. Разработка технологии получения радиофармпрепарата таллия-201-хлорида (РФП Тl-201)

В соответствии с Постановлением государственного комитета СССР по науке и технике от 06.06.1984 г. № 348 на Институт ядерной физики АН КазССР была возложена задача по разработке технологии получения высокоэффективного радиофармпрепарата таллия-201-хлорида с целью организации его производства на базе изохронного циклотрона.

Лаборатории радиоактивных изотопов было поручено выполнение комплекса всех работ по организации этих исследований в сжатые сроки.

Следует добавить, что РФП Тl-201 предназначен для диагностики состояния кровоснабжения миокарда при различных патологических изменениях, ведущих к нарушению его функции. Предполагалось, что препарат будет использоваться в республиках Средней Азии, Казахстане, а также в регионах Сибири и Урала. Для выполнения этого Постановления в институте имелось самое необходимое: циклотрон с нужной энергией час-тиц, а также комплекс сооружений, включающий корпус радиохимии, спецчистки, пункт захоронения радиоактивных отходов со всем необходимым специализированным оборудованием для проведения работ с радиоактивными изотопами и для захоронения радиоактивных отходов. Корпус радиохимии оборудован горячими камерами, которые оснащены копирующими манипуляторами. Физическая защита этих камер позволяет проводить в них работы с активностью до 10 Ки по Co-60. Кроме того, корпус оснащен специальными системами вентиляции, спецканализации и т.д. Лабораторные помещения оборудованы всем необходимым для проведения радиохимических работ по первому классу.

Все работы лаборатории базируются на двух методах.

Первый из них — метод гамма-спектрометрии, позволяющий путем анализа гамма-спектров идентифицировать радионуклиды естественного и искусственного происхождения. Эти работы проводятся на гамма-спектрометре, в состав которого входят:

— детектор высокого разрешения из сверхчистого германия (ORTEC, США), чувствительный объем — 67,6 см³;

— программируемый многоканальный амплитудный анализатор IN-96B (INTERTECHNIQUE, Франция) на 16 тыс. каналов.

Второй метод — атомно-ионной спектроскопии с высокочастотной индуктивно-связанной плазмой (АЭС с ВЧИП), в наибольшей мере соответствующий современным требованиям при решении задач по определению элементного и микроэлементного состава образцов различного происхождения. К числу основных преимуществ установок АЭС с ВЧИП относятся: возможность проведения многоэлементного анализа, определение труднолетучих и трудновозбуждаемых элементов, большой диапазон определяемых концентраций, малые химические влияния и др.

Лаборатория располагает атомно-эмиссионным спектрометром с индуктивно-связанной плазмой (АЭС с ВЧИП) “ЖИ-70П”, который состоит из трех основных блоков: высокочастотного генератора плазмы, поли- и монохроматора.

Полихроматор позволяет определять в одном образце до 22 элементов одновременно, а с помощью монохроматора определяют почти все остальные элементы периодической системы за исключением инертных газов, галогенов, азота, водорода и кислорода. Спектрометр предназначен для анализа водных образцов.

Пределы обнаружения для большинства элементов находятся в пределах 1÷20 нг/мл (мкг/л) для чистых водных растворов.

Воспроизводимость анализа при концентрации элемента, превосходящей предел обнаружения в 10 раз, — на уровне 3÷5%.

Первые успешные эксперименты по получению препарата были выполнены в 1985 году по методике, разработанной в радиохимической лаборатории Института биофизики Минздрава СССР совместно с ИЯФ АН КазССР и ФЭИ (г. Обнинск).

Согласно этой методике, радиоактивный таллий-201 ($T_{1/2} = 72,9$ часа) получается по реакции $^{203}\text{Pb} (\text{P}, \text{Zn}) \rightarrow ^{201}\text{Pb} (T_{1/2} = 9,4 \text{ часа}) \rightarrow ^{201}\text{Tl}$ при облучении протонами с энергией 29 МэВ. Извлечение таллия-201 из облученной мишени проводят в две ступени:

- (1) — выделение радиоактивного свинца из таллиевой мишени и выдержка выделенного радиоактивного свинца для накопления таллия-201 ($T = 32$ часа);
- (2) — отделение накопившегося таллия от радиоактивного свинца.

В условиях нашего института РФП Тl-201 получают при следующих режимах облучения: энергия протонов, падающих на мишень из обогащенного таллия-203, составляет 29 МэВ, ток пучка при этом в пределах 15 мкА, время облучения составляет 18 часов. Выход свинца-201 к концу облучения составляет 2,2 Ки. Выделение радионуклидов свинца из облученной мишени проводится методом соосаждения. Технологический выход составляет 75% и при указанных выше режимах облучения и выходе свинца-201 составляет 160 мКи. Все технологические операции, начиная от приготовления мишени, зарядки мишенного

устройства и заканчивая стерилизацией, а также проверкой на стерильность готового продукта, проводятся подразделениями ИЯФ НЯЦ РК. Конечный продукт, направляемый потребителям, представляет собой бесцветный, прозрачный изотонический, стерильный, апиrogenный раствор с удельной активностью (на момент отправки) не менее 55,5 МБк/мл (1,5 мКи/мл).

РФП Тl-201-хлорид, получаемый по разработанной технологии, по своим показателям на уступает образцам, выпускаемым зарубежными фирмами, а по некоторым характеристикам даже превосходит их (см. табл. 1).

Таблица 1

Сравнительная характеристика препарата таллия-201-хлорида, выпускаемого различными фирмами

Показатели	ИЯФ НЯЦ РК	Amersham	CIS
Объемная активность на дату паспортизации, МБк/мл	≥55	37	37
Содержание натрия хлорида, мг/мл	8,0+10,0	Изотонич. раствор	Изотонич. раствор
рН	5,0+9,0	4,5+7,0	4,0+8,0
Радионуклидная чистота на дату паспортизации, %:			
²⁰¹ Tl	≥98,2	≥97	≥97
²⁰² Tl	≤0,2	≤1,9	≤1,9
²⁰⁰ Tl	≤1,5	≤1,0	≤0,75
²⁰¹ Pb	≤0,05	—	—
²⁰³ Pb	≤0,05	<0,25	<0,25
Неактивные примеси, мкг/мл:			
Tl	≤2,0	—	—
Fe	≤1,0	—	—
Cu	≤0,1	—	—
Срок годности с даты изготовления, сут.	10	3	3
РХЧ, %	≥5	—	—

1.2. Изучение возможности получения РФП Тl-201 в реакциях на ионах гелия-3

Производство РФП Тl-201 по технологии, описанной в разделе 1.1, включает в себя облучение таллия протонами в диапазоне энергии 23,5+28,5 МэВ. Однако специфика работы циклотрона такова, что производить указанный препарат можно 3+4 месяца в год, тогда как для медицинских учреждений необходимо поставлять его регулярно круглый год. Разрешить эту проблему можно несколькими путями, один из которых — использование других режимов работы циклотрона для производства РФП Тl-201.

В лаборатории был предложен новый способ получения РФП Тl-201, используя реакции на ионах гелия-3. Расчетным и экспериментальным путями было показано, что таллий-201 можно получить по реакциям:

- (1) $^{203}\text{Tl}(^3\text{He}, \text{xp})\ ^{206-\text{x}}\text{Bi} \rightarrow\ ^{206-\text{x}}\text{Pb} \rightarrow\ ^{206-\text{x}}\text{Tl}; \text{x}=4,5,6;$
- (2) $^{203}\text{Tl}(^3\text{He}, \text{pyl})\ ^{205-\text{y}}\text{Pb} \rightarrow\ ^{205-\text{y}}\text{Tl}; \text{y}=3,4,5.$

Расчеты функций возбуждения ядерных реакций, приведенных выше, проводились с использованием статистической модели распада составного ядра по программе ALICE, модифицированной во входном канале. Неупругое взаимодействие ионов гелия-3 с тяжелыми ядрами имеет ряд особенностей, основная из которых — развал гелия-3 в поле ядра мишени. Эмпирический учет этого обстоятельства, а также учет неравновесных процессов использовался в настоящих расчетах.

Эксперименты по изучению функций возбуждения соответствующих ядерных реакций (1) и (2) были проведены на выведенном пучке изохронного циклотрона ИЯФ НЯЦ РК. Энергия ионов гелия-3 составляла $60 \pm 0,5$ МэВ. Промежуточные значения энергии достигались торможением первичного пучка алюминиевыми фольгами. Облучение мишеней проводилось в вакууме в течение 20 минут при токе пучка 50 мкА. В табл. 3 представлены расчетные и экспериментальные результаты сечений реакций (1) и (2).

Таблица 2

Экспериментальные и расчетные максимальные значения сечений реакций (1) и (2)

N	Реакция	Энергия ионов гелия-3, МэВ	Сечение ядерной реакции, барн	
			Расчет	Эксперимент
1	$^{203}\text{Tl}(^3\text{He},4n)^{202}\text{Bi}$	36	1,35	1,5
2	$^{203}\text{Tl}(^3\text{He},5n)^{201}\text{Bi}$	46,5	1,67	1,8
3	$^{203}\text{Tl}(^3\text{He},6n)^{200}\text{Bi}$	57,5	1,82	1,3
4	$^{203}\text{Tl}(^3\text{He},p3n)^{202}\text{Pb}$	40	0,01	—
5	$^{203}\text{Tl}(^3\text{He},p4n)^{201}\text{Pb}$	50,5	0,02	—
6	$^{203}\text{Tl}(^3\text{He},p5n)^{200}\text{Pb}$	60	0,03	—

Учитывая тот факт, что статистическая модель не полностью учитывает указанные выше особенности механизма ядерных реакций, все же можно сделать вывод об удовлетворительном согласии расчетных и экспериментальных значений сечений рассмотренных реакций.

Экспериментальное определение выхода ^{201}Tl проводилось нами в двух вариантах: без химической переработки и с химической переработкой облученной мишени. Таллиевые мишени обогащенные по $^{203}\text{Tl} \approx 97,3\%$, $\varnothing = 18$ мм, толщина 500 мкм) облучали на выведенном пучке изохронного циклотрона в двух энергетических диапазонах: $47+33$ МэВ и $44,5+33$ МэВ при токе пучка 1 мкА в течение одного часа. После облучения мишени растворяли в азотной кислоте и делали замеры активности сразу после растворения, а также через 32 часа. Такой подход дал возможность оценить способ получения ^{201}Tl с присутствующими примесями при условии соблюдения технологии радиохимической переработки, включающей в себя выделение Bi и Pb из облученной таллиевой мишени, выдержку висмута-свинцовой фракции и последующее выделение таллия, образовавшегося в результате распада $\text{Bi} \rightarrow \text{Pb} \rightarrow \text{Tl}$. В обоих случаях имело место хорошее согласие полученных результатов и расчетных значений. Это поз-воляет сделать вывод о возможности производства изотопно-чистого ^{201}Tl .

1.3. Технология регенерации таллия-203 из технологических отходов, образующихся при производстве РФП Т1-201

При химической переработке облученной таллиевой мишени первая стадия начинается с растворения мишени в 5-молярной серной кислоте. Для отделения радиоактивного свинца от макроколичества таллия его соосаждают с сульфатом стронция, который отфильтровывают, а сернокислый раствор, содержащий до 30 мг/мл таллия-203, относится к жидким радиоактивным отходам. Обычно эти отходы сливали в спецсток "горячей камеры". С учетом годового потребления стабильного таллия-203 на изготовление мишени безвозвратные потери таллия составляли около 20 грамм общей стоимостью 44 тыс. долл. США, обуславливая высокую себестоимость получаемого радиофармпрепарата.

В лаборатории была разработана эффективная технология регенерации таллия-203 из технологических радиоактивных отходов, образующихся при производстве РФП Т1-201.

С целью применения единой технологии регенерации таллия к разным исходным технологическим растворам (таллий в 5 М H_2SO_4 или в бутилацетате) в лаборатории была предложена схема выделения металлического таллия электрохимическим методом через промежуточную стадию получения $TlCl$ в виде суспензии и последующей цементации таллия. Цементация таллия идет из суспензии на цинковой пыли при комнатной температуре с 2-кратным расходом цинка к стехиометрии и рН суспензии $0,9 \div 1,5$. Выход таллия в металлическую фазу составляет 99,9%. Электролиз таллия осуществляется из суспензии $TlCl$ с рН = $2,8 \div 3,2$ при плотности тока $0,1 \div 0,3 A/cm^2$, температуре 343 К на стеклоуглеродном катоде, в качестве анода используется платина. Предложена и выполнена конструкция электролитической ячейки для проведения электролиза на суспензии; компактный металл таллия получается переплавкой губчатого таллия при температуре 620 К в атмосфере аргона. Суммарный выход таллия в компактный металл, полученный по любой технологической схеме (осадительной или экстракционной), составляет 99%.

Радиофармпрепарат таллий-201-хлорид, полученный от переработки облученной мишени, изготовленной из регенерированного таллия-203 методом цементации, соответствует требованиям фармакопейной статьи.

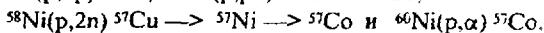
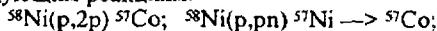
Годовой экономический эффект от регенерации таллиевых технологических отходов, полученных от переработки облученных таллиевых мишеней, составляет 44 тыс. долл. США.

1.4. Разработка технологии получения кобальта-57

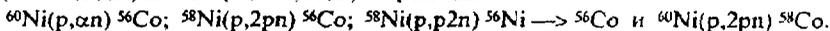
Радиоактивный изотоп кобальт-57 используется в медицине для диагностики раковых заболеваний и в мессбауэровской спектроскопии — универсальном методе, используемом в науке и технике. Кроме того, источники на основе кобальта-57 применяются для настройки спектрометрической аппаратуры. В Казахстане практически единственной возможностью для получения циклотронных радиоактивных изотопов является изохронный циклотрон с регулируемой энергией ионов, позволяющий ускорять протоны до энергии 30 МэВ.

В лаборатории были выполнены исследования по определению оптимальных условий получения радионуклида кобальта-57 (период полураспада 271,5 дня) на циклотроне ИЯФ НЯЦ РК. Было установлено, что наиболее предпочтительным вариантом получения кобальта-57 является способ, основанный на ядерных реакциях с протонами на мишенях никеля естественного изотопного состава, включающего в себя ^{58}Ni — 67,7%, ^{60}Ni — 26,2%, ^{61}Ni — 1,2%, ^{62}Ni — 3,7%, ^{64}Ni — 1,2%. Исходя из этого, нами были рассмотрены ядерные реакции на ядрах ^{58}Ni и ^{60}Ni , приводящие к образованию как радионуклидов кобальта, так и никеля.

Было установлено, что целевой радионуклид кобальта-57 образуется по следующим реакциям:



Кроме целевого радионуклида, в мишени никеля образуются примеси: ^{56}Co ($T_{1/2}=78,8$ дн.) и ^{58}Co ($T_{1/2}=70,8$ дн.) по реакциям:



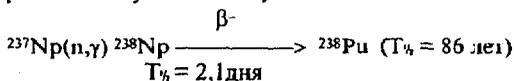
Получить конечный препарат с допустимым пределом радионуклидных примесей можно только после определенной выдержки по времени после окончания цикла облучения мишени. Заметим, что периоды полураспада кобальта-57, -56, -58 относятся как 1 : 0,29 : 0,26. Учитывая это и выбирая приемлемое время выдержки, предпочтительно выбрать входную энергию протонов равной 22 МэВ. В этом случае выдержка составит 100 дней. Возможны и другие варианты, например, увеличить входную энергию до 25 МэВ, но при этом необходимо до 200 дней увеличить выдержку. Хотя в этом варианте содержание в мишени кобальта-57 увеличится на 15%. Диапазон приемлемых изменений энергии и времени выдержки следующий: (26 ± 21) МэВ и (225 ± 30) дней соответственно.

Выделение радиоактивного кобальта-57 из облученной никелевой мишени проводится в 2 стадии: сброс основной массы матрицы-никеля, а именно, хроматографическое отделение кобальта от никеля, с последующей экстракцией с целью доочистки получаемого радиоизотопа от неактивных микропримесей.

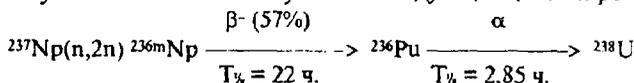
1.5. Получение радионуклидов плутония в реакциях на альфа-частицах

Целью настоящих исследований было получения радионуклидов Pu-236, -237, -238 в реакциях на α -частицах с применением их (в перспективе) в качестве радионуклидного индикатора в радиохимических процессах при анализе плутония в природных объектах.

Как известно, для получения радионуклидов плутония обычно используются пучки нейтронов. Например, ^{238}Pu образуется в атомных реакторах при нейтронном облучении нептуния:



Плутоний-236 можно получить по следующей цепочке реакций:



В реакциях на α -частицах и ионах He-3 также можно получить радионуклиды плутония с $A = 236, 237$ и 238 .

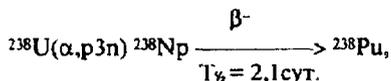
Указанные радионуклиды плутония были получены на циклотроне ИЯФ НЯЦ РК в реакциях на α -частицах с энергией 50 МэВ. В качестве мишеней использовались образцы с UO_2 , обогащенные изотопом ^{235}U (3,3% и 2,4%).

Из облученных мишеней выделяли плутониевую фракцию методом экстракционной хроматографии.

В результате проведенных исследований установлено, что выход радионуклида Pu-237 в реакции $^{235}U(\alpha, 2n) ^{237}Pu$ при энергии альфа-частиц, равной 46,5 МэВ, составляет 90 Бк/мкА·ч, что в пределах 30% согласуется с расчетными значениями.

Суммарный выход Pu-236 и Pu-238 в наших экспериментах составлял 6 Бк/мкА·ч. Учитывая тот факт, что эти радионуклиды образуются в реакциях как на U-235:

$^{235}U(\alpha, n) ^{238}Pu$; $^{235}U(\alpha, 3n) ^{236}Pu$,
так и на U-238:



экспериментальные результаты согласуются с расчетными.

Разработанная методика радиохимического выделения радионуклидов плутония из мишени UO_2 , облученной альфа-частицами, обеспечивает 95%-ный выход целевых радионуклидов. Полученные источники плутония были использованы в качестве радиоактивного индикатора в радиохимических процессах при анализе плутония в образцах грунта Семипалатинского испытательного полигона.

2. АНАЛИТИЧЕСКИЕ РАБОТЫ ПО ОПРЕДЕЛЕНИЮ МИКРОЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА ВЕЩЕСТВА

Научные достижения лаборатории не ограничиваются только разработкой и применением методик и технологий по получению радиоактивных изотопов. Большое место в исследованиях, проводимых лабораторией, занимают работы по определению элементного состава различных веществ. Этот комплекс исследований имеет широкий диапазон — начиная от нефтей и битумов и кончая атмосферными осадками (экологические работы).

2.1. Определение микропримесей металлов в нефтях методом атомно-эмиссионной спектроскопии с высокочастотной индуктивно-связанной плазмой

Анализы проводились на спектроанализаторе JY-70P фирмы "JOBIN YVON" (Франция). Были найдены компромиссно-оптимальные условия эксплуатации прибора при анализе 23 элементов в водных растворах (после соответствующей пробоподготовки образцов битума): расход газа-носителя (аргон) — 0,5 л/мин, плазмообразующего — 18 л/мин, обволакивающего — 0,3 л/мин, транспортирующего — 18 л/мин, высота зоны наблюдения — 15 мм.

Результат анализа элементов методом “введено-найдено” в образцах усредненного битума

Элемент	Концентрация элемента в усредненном битуме, мкг	Концентрация элемента, мкг/г		
		Введено	Найдено	Отклонение, %
Молибден	0,23±0,04	0,31±0,04	0,52	-4
Теллур	1,4±0,2	1,72±0,08	3,1	-1
Кадмий	0,13±0,03	0,88±0,02	1,00	1
Медь	17,1±0,9	3,7±0,1	20,9	±0,5
Литий	0,73±0,07	0,98±0,04	1,75	+2
Хром	21,3±0,7	3,7±0,1	25,2	+1
Никель	68,4±2,0	27,8±0,4	95,7	-1
Цинк	16,9±1,2	3,9±0,1	21,8	+5
Стронций	3,2±0,3	0,95±0,05	4,1	-1
Мышьяк	4,2±0,5	4,8±0,1	9,1	+1
Бериллий	0,14±0,02	0,88±0,02	1,03	+1

Проверка возможных потерь вследствие летучести некоторых микроэлементов, за счет механических потерь и при центрифугировании, а также для контроля выбранной методики разложения битума и перевода золы в раствор осуществлена методом “введено-найдено”. Эталонный образец битума готовился введением металлоорганического стандарта с заданными концентрациями элементов. Результаты анализа образцов усредненного битума методом “введено-найдено” представлены в табл. 3. Результаты получены из анализа 4-х образцов эталонированного усредненного битума; замеры каждого водного образца на спектроанализаторе проводились трижды.

2.2. Разработка методики определения металлов платиновой группы в геологических образцах методом минипробирной плавки в комбинации с АЭС – ВЧИП

Исследования по разработке методики определения металлов платиновой группы в геологических образцах выполнены совместно с лабораторией активационного анализа по заданию НПО “Казнедра” Министерства геологии и охраны недр РК.

Комбинирование пробирной плавки с высокочувствительными инструментальными методами анализа, такими как атомно-абсорбционный, эмиссионный спектральный, рентгенфлуоресцентный, нейтронно-активационный является уже традиционным и позволяет избежать длительных и сложных схем разделения благородных металлов, достигая при этом низких пределов обнаружения на уровне 10^{-6} - $10^{-7}\%$, но зачастую за счет увеличения исходной навески образца. Объединение с АЭС – ВЧИП позволяет перейти к уменьшенным навескам. Этот метод определения имеет нижнюю границу количественных опре-

делений на 1÷3 порядка лучше (в том числе и для благородных металлов) по сравнению с традиционными методами АЭС, а также другие преимущества, такие как:

- большой динамический диапазон определения концентраций, составляющий 5÷6 порядков;
- малая зависимость результатов количественных определений от элементного состава;
- высокая воспроизводимость результатов анализа в пределах 0,5÷2%.

Были выполнены исследования по разработке методики анализа серебряного королька, получаемого после минипробирной плавки по следующей схеме:



Для решения задачи по определению платины и палладия в геологических образцах с пределами обнаружения порядка 10⁻⁷% большое значение имеет оптимизация всех звеньев и рабочих условий спектроаналитического процесса.

Были проведены следующие работы:

1. Выбор оптимальных условий подготовки образца к анализу (растворение королька, упаривание раствора, осаждение серебра).
2. Выбор наиболее чувствительных спектральных линий платины и палладия и изучение влияния спектральных помех на них.
3. Выбор оптимальных условий анализа Pt и Pd: скорости газовых потоков (транспортирующего и обволакивающего газов).
4. Изучение матричных помех от кислот и серебра.

Исследования проводились на спектрометре ЖИ-70П, характеристики которого приведены в разделах 2.1 и 2.2.

Разработанная методика отработана на 12-ти типах государственных стандартных образцов (ГСО) и казахстанских образцах. Предел обнаружения Pt — 7·10⁻⁷%, Pd — 5·10⁻⁷%; при использовании более чистого серебра для получения серебра возможно достижение предела 2·10⁻⁷%. Нижняя граница количественно определяемых концентраций 1,2·10⁻⁶% (Pt) и 2·10⁻⁶%; верхняя граница — выше 10⁻³%; стандартное отклонение 10% для концентраций выше 1·10⁻⁴%. Масса навески 1÷5 г.

Правильность подтверждена контрольными определениями зашифрованных образцов в диапазоне концентраций платины и палладия 0,01÷0,5 г/т.

2.3. Экологические работы

По заданию Казахского государственного университета и совместно с лабораториями этого университета и ЖенПИ была выполнена большая работа по количественному определению микроэлементов в природных водах, почвах и объектах растительного и животного происхождения Карачаганакского газоконденсационного месторождения.

Определение микроэлементов в природных водах проводилось непосредственно из проб без предварительного концентрирования; пробы почв, растений и биоматериала (печень, селезенка, кровь) готовились к анализу сотрудниками лабораторий КазГУ и ЖенПИ. Определение микроэлементов выполнялось на спектроанализаторе ЖИ-70П фирмы "Jobin Yvon" (Франция).

Анализ природных (водоемов, скважин) и водопроводных вод. Проведенные работы по анализу водных объектов (образцов природных вод) показали необходимость учета помех от рассеянного света, возникающего при возбуждении кальция и магния, и корректировки с помощью сканирующей щели. Кроме того, при анализе некоторых образцов природных вод с суммарной концентрацией катионов кальция, магния и натрия больше $N \text{ мг/л}$ получаемые результаты измерений корректировались введением матричных коэффициентов.

Анализ кислотных вытяжек почв и биопроб (животные ткани и органы, кровь). В случае кислотности проб $> 0,5 \text{ M}$ по HNO_3 соответствующее количество кислоты вносилось в эталонные растворы и в растворы для определения аддитивных коэффициентов. При кислотности проб $0,5 \text{ M}$ и менее измерения корректировались введением матричных коэффициентов. Из-за сложного валового состава почвенных проб при анализе учитывается влияние следующих элементов: железа, алюминия, марганца, титана. Образцы разбавлялись 1:100 или 1:1000 в некоторых случаях и в них определялись концентрации этих элементов. Исходные образцы анализировались на остальные элементы, в том числе на цирконий, ванадий, германий с учетом влияния спектральных помех от титана, железа, алюминия, марганца.

В табл. 4 приведены значения нижних концентрационных границ элементов в различных объектах биосферы. Значения их даются по отношению к анализируемым растворам без учета исходной навески в случае почв, биопроб и разбавления в процессе пробоподготовки. Для определения нижних концентрационных границ элементов готовились растворы, содержащие такое же количество макрокомпонентов, как и в реальных образцах различных объектов, в них вводились микроэлементы в диапазоне концентраций от 1 до 200 нг/мл . За величину нижней концентрационной границы элементов принималась концентрация, которая определялась с погрешностью не более 50%.

За период работы по теме "Количественное определение микроэлементов в биогеоценозах Карачаганакского газоконденсатного месторождения в связи с проблемой охраны окружающей среды" методом АЭС с ВЧИП проанализировано 719 образцов.

Следует также отметить работы, выполненные совместно с Республиканским центром "Охрана здоровья" МЗ Казахстана по микроэлементному анализу снега в г. Павлодаре (1991–92 г.г.). Снег был использован как индикатор

очагов загрязнения. Выявлены объекты — источники загрязнения. В 1992 г. лаборатория выполнила следующие экологические работы:

1. По Восточному Казахстану (г. Лениногорск). Объекты анализа — природные и сточные воды, взвеси и дождевые отложения.

2. По Атырауской области (Кенбайское месторождение). Объекты анализа — почвы, растения, воды. Работа выполнена совместно с проектным институтом по землеустройству.

Таблица 4
Пределы обнаружения элементов при анализе объектов биосферы

Элемент	Пределы обнаружения при анализе, нг/мл			
	Природная вода	Органические экстракты природной воды	Ткани, кровь и органы животных (кислые растворы)	Кислотные вытяжки почв
Sn	15	25	50	50
Mo	2	3	10	5+10
Te	25	30	50	70
Cd	2	3	5	10
Mn	0,5	1	2	2
Cu	0,5	1	2	2
Sr	0,5	0,5	1	1
Li	1	1	3	3
Tl	20	25	50	80
Cr	3	5	15	25
Pb	20	25	50	70
Ni	10	10	15	15
Fe	3	5	5	5
Zn	40	50	100	100
K	50	50	100	100
As	20	25	50	70
Na	20	20	20	20
Sb	20	25	50	50
Bi	20	25	50	50
Ba	3	5	10	10
Be	0,5	1	3	5
Al	10	15	20	50
Ge	—	—	—	20
V	—	—	—	15
Ti	3	—	—	5
Zr	—	—	—	7

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Как было отмечено во введении, одной из задач, стоящих перед лабораторией, была организация производства изотопной продукции на базе основных установок института. С этой главной задачей лаборатория успешно справилась. По технологии, разработанной в лаборатории совместно с лабораториями Института биофизики МЗ России (г. Москва) и физико-энергетического института (г. Обнинск), налажено производство и поставка радиофармпрепарата таллия-201-хлорида в медицинские центры Казахстана, России и Кыргызстана.

За 10 лет (с 1986 по 1995 г.г.) произведено и поставлено 5,4 Кюри РФП Тl-201 и обследовано более 3 тыс. пациентов. Высокое качество препарата было отмечено всеми потребителями: институтом клинической и экспериментальной хирургии и институтом кардиологии МЗ Казахстана (г. Алматы), НИИ кардиологии Томского научного центра АМН России, НИИ трансплантологии МЗ России (г. Москва), НИИ кардиологии СО АМН России (г. Тюмень), Киргизским НИИ кардиологии (г. Бишкек).

В лаборатории разработана и внедрена эффективная технология регенерации технологических отходов, содержащих дорогостоящий изотоп — таллий-203. Годовой экономический эффект от регенерации таллиевых технологических растворов, полученных при переработке облученных таллиевых мишеней, составляет более 44 тыс. долл.

Проведены исследования и показана возможность получения РФП Тl-201 в реакции на ионах гелия-3. Технология получения препарата, используемая для варианта с протонами, полностью применима и для переработки мишеней, облученных ионами гелия-3. Общий выход таллия-201 с использованием многослойной мишени (Тl-203 и Тl-205) составляет 30% от выхода по реакции $^{203}\text{Tl}(p,3n) \ ^{201}\text{Pb} \rightarrow \ ^{201}\text{Tl}$. Установлено, что производство РФП Тl-201 на ионах гелия-3 экономически выгодно при облучении двухслойных мишеней пучком ионов током не менее 50 мкА.

В 1992–94 г.г. в лаборатории была разработана и реализована технология получения кобальта-57. Полученные препараты кобальта-57 были поставлены в НИИ кардиологии МЗ РК и были использованы для калибровки радионотопных диагностических установок.

В 1994 г. в лаборатории разработана и реализована методика радиохимического выделения радионуклидов плутония-236, -237 и -238 из мишени урана, облученной альфа-частицами. Полученные источники плутония использовались в качестве трассеров при отработке методики определения плутония в образцах грунта Семипалатинского испытательного полигона.

В лаборатории выполнен большой объем исследований по разработке методик определения элементного и микроэлементного состава нефтей, битумов, геологических образцов и объектов окружающей среды (экологические задачи), основанных на атомно-эмиссионном методе.

Результаты исследований лаборатории опубликованы в 13 научных отчетах и статьях, доложены на 2 международных конференциях. Оригинальные методические разработки оформлены в виде авторских свидетельств и патентов на изобретения (2 авт. свид. и 4 патента).

В перспективе предполагается проводить исследования по разработке новых и совершенствованию действующих методик и технологий получения ра-

диоактивных изотопов на базе изохронного циклотрона и исследовательского атомного реактора НЯЦ РК.

Выбор конкретных изотопов определяется потребностью Министерства здравоохранения Казахстана (Tl-201, Co-57, Ga-67 и I-123), а также возможностью их реализации как в ближнем, так и в дальнем зарубежье. Учитывая спрос и используя на первом этапе заказы Объединенного института ядерных исследований (ОИЯИ, г. Дубна), прорабатывается возможность поставок РФП Tl-201 в объеме 1 Кюри в год (10 поставок по 100 мКи). На ближайшую перспективу планируются работы по получению галлия-67 в объеме 150 мКи, полония-209 в объеме 40 кБк, плутония-236 в объеме 20 Мбк и накопление уникального долгоживущего ядерного изомера гафния-178 — изотопов, используемых в экологии, медицине и для научных исследований. ОИЯИ (г. Дубна), имея широкие деловые и научные связи с различными странами, может оказать действительную помощь в вопросах технического переоснащения циклотрона, эффективного получения циклотронных изотопов и их реализации на международном рынке.

Учитывая особенности современного состояния финансирования научных исследований, реально вырисовывается стратегия и последовательность всех работ по разработке методик получения изотопов, организации их производства. Существенным и определяющим фактором будет организация коммерческой деятельности лаборатории.

Предполагается также дальнейшее развитие исследований по экологии как в рамках Республиканских программ, так и по контрактам.