

# Определение радиохимической и радионуклидной чистоты препарата $^{131}\text{I}$

© И. В. Целищев, Ю. П. Савочкин, М. И. Мельник, Т. Ф. Трепалина

ФГУП «ГНЦ РФ НИИ атомных реакторов», Димитровград Ульяновской обл.

Получено 15.11.2005

УДК 543.544.6:681.142

Радиохимическая чистота препарата  $^{131}\text{I}$  (доля основной формы иодида) определяется методом восходящей бумажной хроматографии. В качестве носителя используют смесь иодида, иодата и карбоната натрия, а в качестве подвижной фазы – смесь метанола с водой. Используемый для измерения распределения активности  $^{131}\text{I}$  по длине хроматограммы сканирующий  $\beta$ -спектрометр позволяет определять радиохимическую чистоту на уровне 99.98%. Радионуклидную чистоту препарата  $^{131}\text{I}$  измеряют на  $\gamma$ -спектрометре с детектором из особо чистого Ge. В препарате, выделенном из  $\text{TeO}_2$  через 3–4 сут после окончания его облучения в реакторе, доля радионуклидных примесей оценивается по их пределам обнаружения и составляет не более 0.03%. В выдержанном в течение 6–7 месяцев препарате (что отвечает снижению активности  $^{131}\text{I}$  вследствие распада  $10^6$ – $10^7$  раз) обнаруживается присутствие  $^{75}\text{Se}$ , доля которого по активности при пересчете на момент окончания облучения составляет  $2 \cdot 10^{-6}\%$ .

Для паспортизации производимого в ГНЦ РФ НИИАР препарата  $^{131}\text{I}$ , выделенного из облученного в реакторе  $\text{TeO}_2$  [1], используют методики определения его радиохимической и радионуклидной чистоты. В данной статье содержится краткое описание этих методик, особенностей используемых измерительных установок и результаты исследования качества препарата.

## Определение радиохимической чистоты

Согласно требованиям к препарату, радиохимическая чистота (доля иода в основной форме – форме иодида) должна составлять не менее 95%. Ее определяют методом восходящей бумажной хроматографии. В качестве носителя используют смесь иодида, иодата и карбоната натрия, а в качестве подвижной фазы – смесь метанола с водой. Для проявленной хроматограммы определяют распределение активности  $^{131}\text{I}$  по ее длине и по соотношению площадей пиков, соответствующих основной и примесным химическим формам иода, вычисляют радиохимическую чистоту [2].

Хроматографическую бумагу марки Ватман N 1 готовят следующим образом. Бумагу разрезают на полоски длиной 40 и шириной 2 см. Полоски пропитывают раствором метанола в воде (в соотношении 3 : 1) и подсушивают. Носитель объемом 10–20 мкл и пробу препарата объемом 1–2 мкл (активность  $10^5$ – $10^6$  Бк) помещают на полоску в виде пятна на расстоянии 2 см от ее края. Хроматографический процесс проводят в закрытой камере в течение 4–6 ч, пока фронт подвижной фазы не дойдет до уровня 28–30 см от стартовой линии.

Типичная гистограмма, получаемая при измерении распределения  $^{131}\text{I}$  по длине хроматограммы методом разрезания ее на отрезки и поочеред-

ного измерения  $\gamma$ -излучения каждого отрезка, приведена на рис. 1. На гистограмме отмечены зоны разных химических форм иода (см. ниже).

Химическая форма	$R_f$
Иодид $^{131}\text{I}^-$ (основная)	0.8
Иодат $^{131}\text{IO}_3^-$ (примесная)	0.4
Периодат $^{131}\text{IO}_4^-$ (примесная)	0

Для автоматизации процесса измерения разработан и изготовлен сканирующий  $\beta$ -спектрометр [3]. Одним из основных требований к нему при разработке было получение при сканировании хроматограммы результатов, близких к результатам измерения отдельных отрезков. Анализ типичных гистограмм сканирования и ядерно-физических характеристик  $^{131}\text{I}$  показывает, что в сканирующей установке предпочтительней использовать детектор, регистрирующий  $\beta$ -излучение данного радионуклида (максимальная энергия 810 кэВ, средняя 180 кэВ [4]) и малочувствительный к его  $\gamma$ -излучению (самая интенсивная линия с энерги-

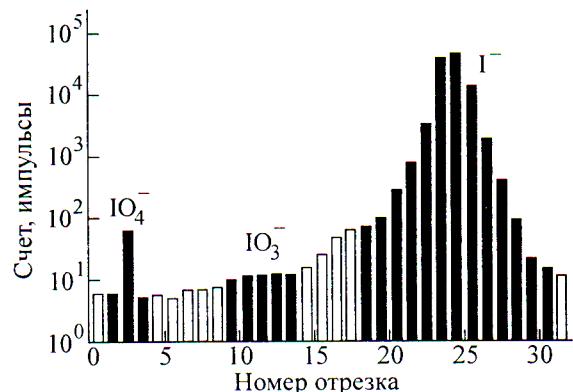


Рис. 1. Типичная гистограмма распределения  $^{131}\text{I}$  по длине хроматограммы.

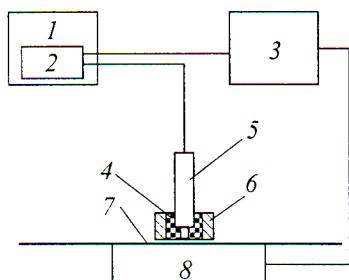


Рис. 2. Общая схема установки сканирования. 1 – компьютер, 2 – плата SBS-57 MSc, 3 – блок питания и управления, 4 – коллиматор, 5 – блок детектирования, 6 – защита, 7 – хроматограмма, 8 – устройство перемещения.

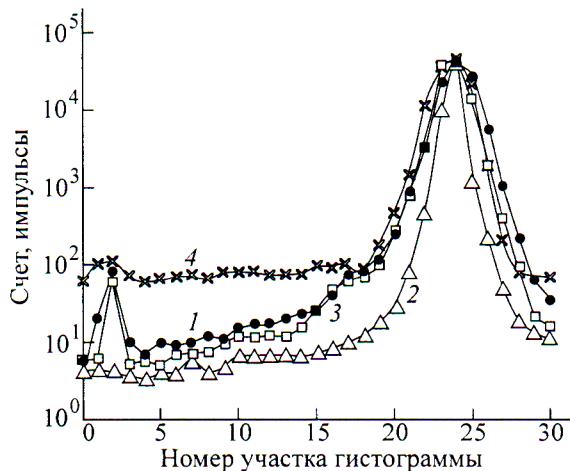


Рис. 3. Результаты измерения. 1 – сканирование хроматограммы на  $\beta$ -спектрометре, 2 – сканирование одного отрезка на  $\beta$ -спектрометре, 3 – измерение отдельных отрезков на  $\gamma$ -спектрометре, 4 – пример из литературного источника [2].

ей 364 кэВ при выходе 82.4% [5]).  $\beta$ -Излучение легче коллимировать, а значит, и легче минимизировать влияние излучения хроматографического пятна основной формы иода на измерение участков хроматограммы, соответствующих примесным формам. Выбранный детектор из сцинтиллирующей пластмассы с малым атомным номером ( $Z_{\text{эфф}} = 5$ ) и малыми размерами (толщина 0.2 см, площадь  $2 \times 1 \text{ см}^2$ ) имеет эффективность регистрации  $\gamma$ -излучения  $^{131}\text{I}$  0.1. Коллимирующее отверстие с сечением  $2 \times 1 \text{ см}^2$  обеспечивает избирательность измерения на хроматограмме отдельного участка длиной 1 см. Дополнительная защита блока детектирования в виде свинцового кольца с внешним диаметром 6 см имеет фактор ослабления  $\gamma$ -излучения  $^{131}\text{I}$  около  $5 \cdot 10^{-3}$ .

Общая схема сканирующей установки приведена на рис. 2. Устройство перемещения обеспечивает шаг сканирования 1 см с погрешностью позиционирования  $\pm 0.02$  см. Вставляемый в персональный компьютер одноплатный спектрометр

SBS-57 MSc питает блок детектирования, регистрирует и обрабатывает поступающую с него информацию, управляет через блок питания и управления устройством перемещения в автоматическом режиме. Программное обеспечение прибора дает возможность настройки режимов работы спектрометра, ввода параметров измерения (число шагов, длительность экспозиции на одном шаге), сохранения и считывания файлов гистограмм, вычисления доли каждой из трех химических форм  $^{131}\text{I}$ .

При метрологической аттестации установки сканирования были определены некоторые ее параметры. Максимально допустимая загрузка измерительного канала составляет  $2.8 \cdot 10^4 \text{ с}^{-1}$ , что соответствует активности  $^{131}\text{I}$ , измеряемой на одном шаге,  $7.5 \cdot 10^5 \text{ Бк}$ . Линейное разрешение, соответствующее разным долям высоты пика, приведено ниже. Его определяли по гистограмме (рис. 3, кривая 2), полученной при сканировании отрезка хроматограммы длиной 1 см в том же режиме, при котором сканируется вся хроматограмма.

Доля высоты пика	Линейное разрешение, см
0.5	1.3
0.1	2.7
0.01	4.3
0.001	7.4

По этой же гистограмме рассчитана максимально детектируемая доля активности основного хроматографического пика как отношение его площади к сумме площадей всех трех пиков, которая составила 99.98%. При этом для двух примесных форм иода ввиду отсутствия соответствующих им пиков за площадь принимали пределы их обнаружения. Так как при измерении реальных хроматограмм расстояние между вторым и третьим пиками изменялось от 10 до 15 см, было рассчитано минимальное расстояние между ними, при котором максимально детектируемая доля сохраняет свое значение. Это расстояние составило 6 см, что с запасом гарантирует правильное измерение реальных хроматограмм.

На рис. 3 представлены гистограммы, полученные авторами данной работы измерением на сканирующем  $\beta$ -спектрометре (кривая 1), на  $\gamma$ -установке (отдельные отрезки, кривая 3), а также пример гистограммы из литературного источника [2] (кривая 4). Их сравнение позволяет сделать два вывода. Во-первых, сканирование на  $\beta$ -спектрометре дает одинаковые с измерением отдельных отрезков результаты. Во-вторых, измерительные установки, используемые авторами данной работы, обеспечивали более низкое по сравнению с примером из литературного источника значение фона при измерении участка хроматограммы, соответствующего примесным формам иода. Это

регистрируемого интегрирующим устройством управляемого спектрометра дает 100% выхода линии, сохраняя численность  $^{131}\text{I}$ .

становки ее панели измерения, что на одни, соединенные, приведены (рис. 3, отрезка в режиме амма.

симального хранения, см

олученное сканирование, также очника сделать  $\beta$ -спектрометрической данной знанию, ачение мы, со- а. Это

**Таблица 1.** Параметры радионуклидов, накопившихся в сердечнике мишени

Параметр	$^{131}\text{I}$	$^{121}\text{Te}$	$^{123m}\text{Te}$	$^{129m}\text{Te}$	$^{124}\text{Sb}$	$^{75}\text{Se}$
$T_{1/2}$ , сут	8.0	16.8	119.7	33.6	60.2	119.8
Основная линия, кэВ	365	573	159	696	603	265
Выход линии, %	81	80	84	3	97.9	60
Активность в мишени, мКи	$4.1 \cdot 10^3$	$1.8 \cdot 10^1$	$3.0 \cdot 10^{-2}$	$1.4 \cdot 10^{-2}$	0.25	<3.2
Активность в пробе препарата через 4 сут после облучения, Бк	$9.0 \cdot 10^4$	<3.5	<7.1	<115	<3.3	<7.9
Активность в пробе препарата, выдержанного 205 сут, Бк	$1.3 \cdot 10^3$	<0.2	<0.7	<3.7	<0.05	87

**Таблица 2.** Параметры радионуклидов, накопившихся в оболочке мишени

Параметр	$^{59}\text{Fe}$	$^{60}\text{Co}$	$^{46}\text{Sc}$	$^{65}\text{Zn}$	$^{51}\text{Cr}$
$T_{1/2}$ , сут	44.5	1920	83.8	244	27.7
Основная линия, кэВ	1099	1173	1120	1115	320
Выход линии, %	56.5	100	100	50.8	9.8
Активность, мКи	0.81	0.084	0.26	1.8	3.5
Активность в пробе препарата через 4 сут после облучения, Бк	<1.1	<0.5	<1.6	<1.2	<40
Активность в пробе препарата, выдержанного 205 сут, Бк	<0.04	<0.05	<0.15	<0.05	<1.2

позволяет подтвердить высокое значение параметра радиохимической чистоты препарата  $^{131}\text{I}$ , производимого в ГНЦ РФ НИИАР. Оно составляет не менее  $99.8 \pm 0.1\%$ , что с запасом удовлетворяет предъявляемым к препарату требованиям.

### Определение радионуклидной чистоты

Согласно требованиям к радионуклидной чистоте препарата, доля активности  $^{131}\text{I}$  в нем должна составлять не менее 99.9% [2]. Для ее определения использовали  $\gamma$ -спектрометр на основе детектора из особо чистого Ge (Ortec) и спектрометрического устройства SBS-50M (Грин Стар Технолоджис). Энергетическое разрешение составляло 1.6 кэВ по линии 1.3 МэВ. Измеряемые источники представляли собой водный раствор объемом 1 мл в стеклянной пробирке диаметром 14 мм. Градуировку спектрометра по энергии и по эффективности проводили с помощью образцовых источников, содержащих  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  и  $^{152}\text{Eu}$ .

Активность радионуклидов в измеряемой пробе рассчитывали стандартным методом по интенсивности аналитических пиков в спектре с учетом выхода  $\gamma$ -линий и эффективности их регистрации. При определении пределов обнаружения радионуклида за интенсивность его аналитического пика принимали величину, равную утроенному квадратному корню из интенсивности зоны спектра, соответствующей его  $\gamma$ -линии с наибольшим выходом. В спектре  $\gamma$ -излучения, полученном при измерении пробы препарата через 3–4 сут после окончания облучения мишени в реакторе, присутствуют только характерные линии  $^{131}\text{I}$ . Поэтому радионуклидную чистоту в таком «свежем» препарате оценивали по пределам обнаружения актив-

ности  $\gamma$ -излучающих радионуклидов  $^{123m}\text{Te}$  и  $^{75}\text{Se}$ . Полученное значение составляет не более 99.97% при измерении с максимально допустимой загрузкой спектрометра и с продолжительностью 4 ч. Выбор этих радионуклидов сделан на основании исследования состава  $\gamma$ -излучателей в облученной мишени и в препарате, выдержанном после окончания облучения мишени в течение длительного времени. Содержание основных радионуклидов с периодом полураспада не менее суток на момент окончания облучения в сердечнике облученной мишени (табл. 1) и в ее алюминиевой оболочке (табл. 2) определяли неразрушающим методом на установке дистанционных  $\gamma$ -спектрометрических измерений объектов, находящихся в защитной камере [6]. Для  $^{124}\text{Sb}$  в табл. 1 приведено количество, найденное в газовой полости мишени, а предел обнаружения этого радионуклида при измерении сердечника мишени равен 1.5 мКи, что сопоставимо с пределом обнаружения  $^{75}\text{Se}$ .

В случае присутствия в препарате  $^{131}\text{I}$  радиоактивных изотопов Te наиболее вероятным является обнаружение  $^{123m}\text{Te}$ , так как у него самая большая активность (табл. 1) и большой выход основной аналитической линии. Попадание в препарат радионуклидов, накапливающихся в оболочке мишени, маловероятно, так как перед процессом отгонки иода она механически отделяется от облученного оксида Te. Это подтверждается тем, что они не были обнаружены в пробе выдержанного в течение 6–7 месяцев препарата, в котором активность  $^{131}\text{I}$  уменьшается в  $10^6$ – $10^7$  раз (табл. 2).

Единственным примесным радионуклидом, обнаруживаемым в пробах выдержанного препарата на фоне остаточной активности  $^{131}\text{I}$ , является  $^{75}\text{Se}$ ,

содержание которого на момент измерения существенно превышает пределы обнаружения изотопов Тe, в том числе самого долгоживущего из них –  $^{123m}\text{Te}$ . Для приведенного в табл. 1 типичного примера доля обнаруженного  $^{75}\text{Se}$  в препарате  $^{131}\text{I}$ , пересчитанная на момент окончания облучения, с учетом распада этих радионуклидов составляет  $(2.0 \pm 0.1) \cdot 10^{-6}\%$ . Эта величина вполне соответствует требованиям, предъявляемым к препаратуре.

Таким образом, применяемые в ГНЦ РФ НИИАР методики и измерительные установки для определения радиохимической и радионуклидной чистоты препарата  $^{131}\text{I}$  соответствуют европейским фармакопейным требованиям. Исследование характеристик автоматической сканирующей установки показало, что результаты измерения с ее помощью совпадают с результатами измерения отдельных отрезков и позволяют подтверждать высокое значение радиохимической чистоты, с запасом удовлетворяющее требованиям к препаратуре. Исследования состава  $\gamma$ -излучателей в облученной мишени с диоксидом теллура, а также в выделенном из нее препарате  $^{131}\text{I}$  через 3–4 сут и через 6–7 меся-

цев после окончания облучения показали, что параметры для определения радионуклидной чистоты являются  $^{123m}\text{Te}$  и  $^{75}\text{Se}$ . Измеренное по ним значение этого параметра также вполне удовлетворяет требованиям к препаратуре.

### Список литературы

- [1] Савочкин Ю.П., Овсянников Ю.Ф., Рыбин Д.Г. и др. // Наука и технологии в промышленности. 2001. Т. 3, № 6. С. 12–16.
- [2] Sodium Iodide ( $^{131}\text{I}$ ) Solution. European Pharmacopoeia. 1997. Р. 1496–1497.
- [3] Арсаев М.И., Дорин А.Б., Кондрашов М.В., Целищев И.В. // Сб. матер. Восьмого ежегодного семинара в Государственном центральном институте повышения квалификации руководящих работников и специалистов Министерства РФ по атомной энергии (ГЦИПК) 19–23 ноября 2001 г. / Под ред. В. Я. Карпенко. Обнинск: ГЦИПК, 2002. С. 133–139.
- [4] Мусеев А. А., Иванов В. И. Справочник по дозиметрии и радиационной гигиене. М.: Энергоатомиздат, 1990. С. 20.
- [5] Гусев Н. Г., Дмитриев П. П. Квантовое излучение радиоактивных нуклидов: Справочник. М.: Атомиздат, 1977. С. 139.
- [6] Целищев И. В., Гаврилов В. Д. // Сб. тр. ГНЦ РФ НИИАР / Под ред. В. А. Цыканова. Димитровград, 2001. № 3. С. 39–46.