

УВЕЛИЧЕНИЕ ВЫХОДА ИЗОТОПА ^{99}Mo ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МИШЕНИ ИЗ ПРИРОДНОГО МОЛИБДЕНА СМЕШАННЫМ γ, n -ИЗЛУЧЕНИЕМ

А.Н. Довбня, В.В. Митроченко, В.И. Никифоров, С.А. Пережогин, А.Э. Тенишев, А.В. Торговкин, В.Л. Уваров, В.А. Шевченко, Б.И. Шраменко, Т.В. Мальхина¹
**Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
 Харьков, Украина;**

¹*ХНУ им. В.Н. Каразина, Харьков, Украина*
E-mail: uvarov@kipt.kharkov.ua

Изотоп ^{99m}Tc можно производить фотоядерным методом по реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$. Используемый для ее реализации конвертер тормозного излучения является одновременно источником фотонейтронов. Поэтому, при облучении мишени из природного молибдена потоком смешанного γ, n -излучения можно ожидать возрастания выхода ^{99}Mo за счет подключения канала $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Разработаны метод и устройство, обеспечивающие возможность измерения выхода ^{99}Mo в мишени из природного молибдена при ее размещении внутри модератора нейтронов, а также без него. На ускорителе ЛУ-40м ННЦ ХФТИ проведены экспериментальные исследования в диапазоне энергий электронов 30...60 МэВ. Показано, что применение модератора увеличивает выход ^{99}Mo до 30 %. Проведено компьютерное моделирование эксперимента двумя способами – с использованием программной системы PENELOPE-2008 и библиотеки классов Geant 4 9.4. Результаты моделирования хорошо согласуются с экспериментальными.

ВВЕДЕНИЕ

В последние годы значительное внимание уделяется разработке не реакторных технологий производства изотопа ^{99m}Tc , с использованием которого проводится более 80 % диагностических процедур в современной ядерной медицине [1]. В качестве примера рассматривается фотоядерный метод на основе реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ [2].

Конвертер пучка электронов в тормозное излучение одновременно является квазиизотропным источником фотонейтронов. В обычных условиях последние дают в активацию мишени незначительный вклад в виде примесей.

Известно, что природный молибден включает в себя смесь стабильных изотопов, в том числе, ^{100}Mo (9,63 %) и ^{98}Mo (24,13 %). Поэтому, при облучении мишени из природного молибдена потоком смешанного γ, n -излучения можно ожидать, помимо фотоядерного канала, также наработку ^{99}Mo за счет реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Без применения замедлителя нейтронов величина дополнительного выхода ^{99}Mo не превышает нескольких процентов ввиду малости сечения радиационного захвата нейтронов ядром ^{98}Mo (не более 10,5 мбарн). Вместе с тем, сечение этой реакции на тепловых нейтронах возрастает до 130 мбарн [3]. В работе изучена возможность увеличения выхода ^{99}Mo в мишени из природного молибдена путем использования в мишенном устройстве замедлителя нейтронов.

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Для сравнения выхода ^{99}Mo без замедлителя нейтронов и при его наличии были разработаны два варианта мишенного устройства. Определение выхода ^{99}Mo отдельно в фотоядерном канале производилось при помощи устройства, приведенного на Рис.1. Оно включает патрубок из алюминия, осесимметричный пучку электронов, с размещенными в нем конвертером С и мишенью Т.

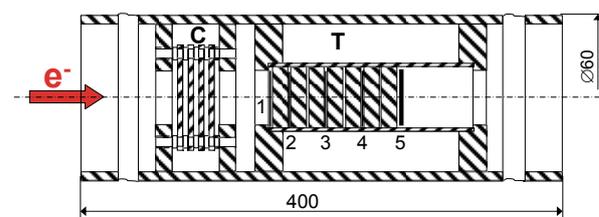


Рис.1. Мишенное устройство без замедлителя нейтронов



Рис.2. Мишенное устройство с замедлителем нейтронов

Конвертер С представляет собой 4 пластины из тантала толщиной 1 мм каждая, разделенные такими же воздушными промежутками для охлаждения. Мишень Т включает 7 дисков из молибдена диаметром 19 и толщиной 3 мм каждый. Между дисками размещены 5 Мо-фольг (0,09 мм) для спектрометрического анализа выхода изотопов без влияния самопоглощения γ -квантов (места размещения фольг в мишени Т указаны номерами на Рис.1). Для измерения суммарного выхода ^{99}Mo в (γ, n) - и (n, γ) -каналах в условиях увеличенного потока замедленных нейтронов патрубок с конвертером и мишенью размещался внутри замедлителя (модератора) нейтронов (Рис.2).

Для определения потока быстрых и замедленных нейтронов в теле модератора был выполнен канал, в котором размещался набор активационных детекторов из Au, Re, In и As. Расстояние от конвертера до детекторов составляло 70 мм.

На ускорителе ЛУ-40м проведены измерения выхода изотопа ^{99}Mo при наличии замедлителя и без него. Мишень-сборка облучалась смешанным потоком γ ; n-излучения в течение одного часа при среднем токе пучка электронов 4 мкА. После "остывания" мишени производилось измерение удельной активности ^{99}Mo и ^{90}Mo в измерительных Мо-фольгах. Последний изотоп образуется по реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo}$, и его активность не зависит от спектра нейтронов в эксперименте. По данным измерений строилась зависимость выхода ^{99}Mo по глубине, нормированная к выходу ^{90}Mo .

2. КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Для расчета выхода ^{99}Mo и ^{90}Mo в фотоядерном канале был использован метод моделирования на основе модифицированного транспортного кода PENELOPE [4]. Используемые в расчетах сечения реакций (Рис.3) были взяты из базы данных [5].

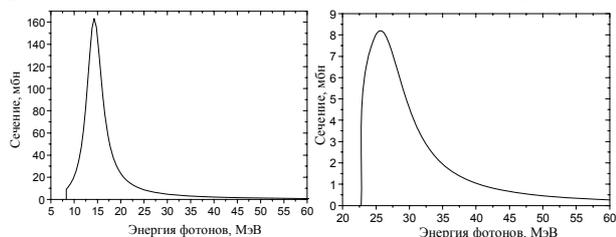


Рис.3. Сечения реакций $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ (а) и $^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo}$ (б)

Параллельно с расчетами на основе кода PENELOPE было проведено компьютерное моделирование с использованием библиотеки классов Geant 4 версии 9,4 (декабрь 2010 г.) [6, 7]. Результаты моделирования показали, что модель низких энергий электромагнитных процессов "Livermore" [7] и модель "Penelope", используемые в библиотеке классов Geant 4, дают отличающиеся на несколько процентов значения выхода тормозных фотонов в области 60...90 МэВ. На Рис.4 показаны результаты моделирования выхода ^{99}Mo (сплошные кривые) при использовании модератора и без него при энергии электронов 60 МэВ, а также экспериментальные данные (точки).

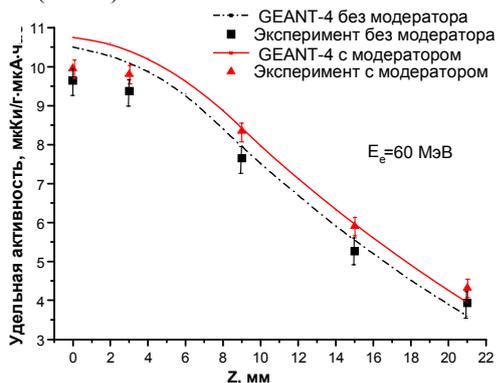


Рис.4. Выход ^{99}Mo при энергии электронов 60 МэВ

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

По результатам обработки спектров первых измерительных фольг (позиция 1 на Рис.1) вычислялось отношение активности ^{99}Mo к ^{90}Mo на момент окончания облучения. Для энергии пучка 40 МэВ отношение A_0^{99} / A_0^{90} составляло 2,5 в устройстве без применения модератора и 3,75 при облучении мишени с модератором (Рис.5).

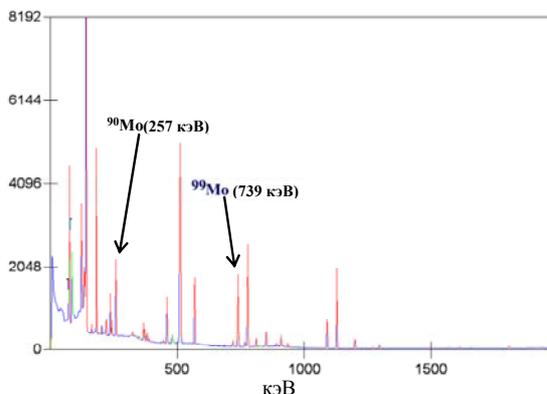


Рис.5. γ -спектр облученного молибдена

На Рис.6 представлены результаты измерения распределений удельной активности ^{99}Mo и ^{90}Mo вдоль оси мишеней при энергии электронов 40 и 60 МэВ соответственно. Сплошными кривыми приведены данные расчетов выхода этих изотопов в фотоядерном канале при помощи транспортного кода PENELOPE.

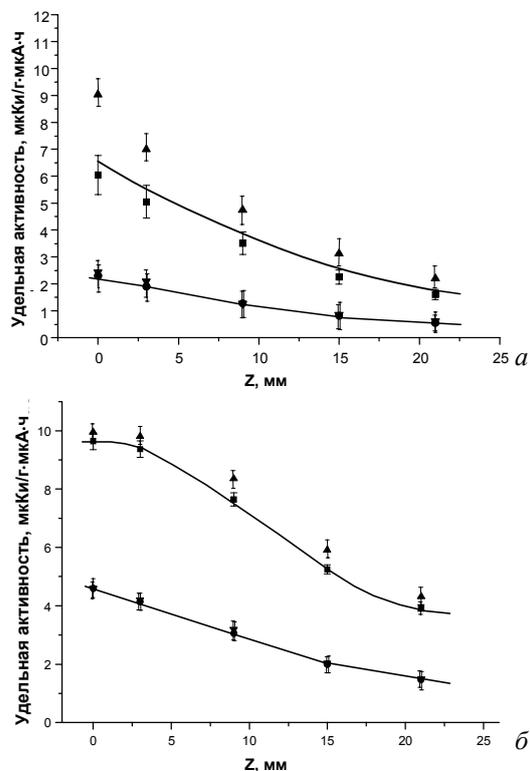


Рис.6. Распределение активности изотопов по глубине мишени: а – $E_0=40$ МэВ, б – $E_0=60$ МэВ

- – ^{99}Mo без замедлителя;
- – ^{90}Mo без замедлителя;
- ▲ – ^{99}Mo с замедлителем;
- ▼ – ^{90}Mo с замедлителем)

Анализ показывает, что при увеличении энергии электронов до 60 МэВ, профиль распределения активности ^{99}Mo по глубине мишени изменяется. Это может быть объяснено тем, что часть электронов пучка проходит через конвертер, имея энергию выше порога реакции, и генерирует надпороговые фотоны непосредственно в молибденовой мишени. В пользу такого объяснения свидетельствует, в частности, тот факт, что форма распределения активности ^{99}Mo с ростом энергии электронов практически не изменилась. Действительно, порог генерации ^{99}Mo составляет 22,8 МэВ, в то время как у ^{99}Mo – 8,3 МэВ (см. Рис.3). Поэтому при энергии электронов 60 МэВ источником высокоэнергетичных фотонов для реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma,2n)^{90}\text{Mo}$ продолжает оставаться конвертер.

Кроме контроля активности ^{99}Mo и ^{90}Mo , при каждом облучении при помощи нейтрон-активационных детекторов (Re, As, In) измерялась плотность потока нейтронов (Табл.1 и 2). Из приведенных данных видно, что плотность потока замедленных нейтронов составляет 0,5...0,65 от плотности потока быстрых нейтронов.

Плотность потока тепловых нейтронов в месте расположения Мо мишени можно оценить на основе разности активности ^{99}Mo , нарабатываемой при облучении с модератором и без него. Проведенные оценки дают значения $\sim 1,0 \cdot 10^{11}$ при энергии электронов 40 МэВ и $\sim 1,3 \cdot 10^{11}$ ($\text{см}^2 \cdot \text{с} \cdot 100 \text{ мкА}$)⁻¹ при 60 МэВ.

Таблица 1

Плотность потока быстрых нейтронов

Детектор	Сечение реакции, барн	Плотность потока, $1/\text{см}^2 \cdot \text{с} \cdot 100 \text{ мкА}$		
		30 МэВ	40 МэВ	60 МэВ
$\text{Re}^{187} \rightarrow \text{Re}^{188}$	0,165	4,47 E+09	6,99 E+09	1,16 E+10
$\text{Re}^{185} \rightarrow \text{Re}^{186}$	0,18	4,77 E+09		2,80 E+10
$\text{In}^{115} \rightarrow \text{In}^{115m}$	0,2		4,30 E+09	
$\text{In}^{115} \rightarrow \text{In}^{116}$	0,166	4,12 E+09	1,02 E+10	1,21 E+10
$\text{As}^{175} \rightarrow \text{As}^{176}$	0,0225		1,19 E+10	1,28 E+10

Таблица 2

Плотность потока медленных нейтронов

Детектор	Сечение реакции, барн	Плотность потока, $1/\text{см}^2 \cdot \text{с} \cdot 100 \text{ мкА}$		
		30 МэВ	40 МэВ	60 МэВ
$\text{Re}^{187} \rightarrow \text{Re}^{188}$	75,0	2,37 E+09	4,58 E+09	5,76 E+09
$\text{Re}^{185} \rightarrow \text{Re}^{186}$	101,0	2,85 E+09	5,36 E+09	6,8 E+09
$\text{In}^{115} \rightarrow \text{In}^{116}$	145,0	1,34 E+09	3,37 E+09	7,39 E+09
$\text{Au}^{197} \rightarrow \text{Au}^{198}$	95,0	2,55 E+09		
$\text{As}^{175} \rightarrow \text{As}^{176}$	4,1	4,15 E+09	9,43 E+09	1,23 E+10

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Увеличение выхода ^{99}Mo при применении данного замедлителя достигает 30 % для энергии электронов 40 МэВ. Эта энергия является предпочтительной при наработке ^{99}Mo по причинам, связанным с тепловой стойкостью мишенного устройства. При повышении энергии электронов величина относительного прироста активности снижается в основном из-за снижения относительной доли медленных нейтронов в их общем потоке. Такая ситуация возникает вследствие недостаточных размеров замедлителя (27×30 см) и тонкого слоя отражателя тепловых нейтронов (15 мм). Можно ожидать, что оптимизация состава и геометрии модератора обеспечит дополнительное увеличение выхода ^{99}Mo .

Измеренные значения плотности потока нейтронов в области размещения детекторов находятся в диапазоне от $3,4 \cdot 10^9$ до $2,8 \cdot 10^{10}$ ($\text{см}^2 \cdot 100 \text{ мкА} \cdot \text{с}$)⁻¹. Такой разброс значений может быть объяснен тем, что в расчетах использовались приведенные в таблицах сечения захвата, не учитывающие реальный энергетический спектр нейтронов [3]. Кроме того, при применении замедлителя указанных выше размеров в месте расположения детекторов присутствует значительное количество надтепловых нейтронов, что вносит дополнительную погрешность в определение плотности потока [8].

Удовлетворительное совпадение расчетных и экспериментальных данных по фотоядерному выходу ^{99}Mo и ^{90}Mo свидетельствует о правильном описании сечений и адекватном методе расчетов. Оба метода моделирования фотоядерных процессов – на основе пакета PENELOPE и с использованием библиотеки классов GEANT 4 (модель низких энергий “Livermore”), показали достаточно близкие результаты.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. *Making Medical Isotopes: Report on the Task Force on Alternatives for Medical Isotopes Production.* TRIUMF. Canada. 2008. <http://www.triumf.ca/report-medical-isotope-production>.
2. N.P. Dikiy, A.N. Dovbnya, Yu.V. Lyashko, E.P. Medvedeva, Yu.D. Tur, V.L. Uvarov, I.D. Fedorets, S.A. Pashchuk, I.G. Evseev. Production of medical isotopes at electron accelerators // *Problems of Atomic Science and Technology. Series «Nuclear Physics Investigations»*. 2000, №2(36), p.58-61.
3. *Handbook on Nuclear Activation Data: Technical report ser. №273.* International Atomic Energy Agency, Vienna, 1987.
4. F. Salvat, J.M. Fernández-Varea and J. Sempau. PENELOPE-2008. A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport // *OECD, NEA, Issy-les-Moulineaux, France, 2008.*
5. *Handbook of photonuclear data for applications Cross sections and spectra,* IAEA-TECDOC-1178, IAEA, 2000.
6. Geant 4 – a simulation toolkit // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research.* 2003, A 506. p.250-303.

7. Geant 4 // *Physics Reference Manual*. <http://geant4.web.cern.ch/geant4/UserDocumentation/UsersGuides/PhysicsReferenceManual/fo/PhysicsReferenceManual.pdf>. 2010, с.534.
8. H.R. Vega-Carrillo, C. Torres-Muñech. Low energy neutrons from Pu-Be isotopic neutron source in moderating media // *Revista Mexicana de fisica* 2002, v.48 (5), p.405-412.

Статья поступила в редакцию 07.10.2011 г.

AN INCREASE OF ^{99}Mo YIELD UNDER MIXED γ , n-IRRADIATION OF TARGET FROM NATURAL MOLYBDENUM

A.N. Dovbnya, V.V. Mitrochenko, V.I. Nikiforov, S.A. Perezhogin, A.Eh. Tennishev, A.V. Torgovkin, V.L. Uvarov, V.A. Shevchenko, B.I. Shramenko, T.V. Malykhina

The ^{99}Mo isotope can be produced by photonuclear technique via $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ reaction. A bremsstrahlung converter used for its realisation, is being simultaneously a source of photoneutrons. Therefore, under irradiation of a target from the natural molybdenum by mixed γ , n-radiation one can expect an increase of the ^{99}Mo yield at the expense of an additional $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ channel. The method and device providing a possibility of the ^{99}Mo yield measurement in a target from natural molybdenum at its placing in a moderator of neutrons, and also without it are developed. Experimental study was conducted at accelerator LU-40m of NSC KIPT in the electron energy range 30...60 MeV. It is shown, that moderator application increases the ^{99}Mo yield up to 30 %. Computer simulation of the experiment on the basis of PENELOPE-2008 and GEANT 4 9.4 program systems was carried out. The results obtained are in a good agreement with the experimental data.

ЗБІЛЬШЕННЯ ВИХОДУ ІЗОТОПУ ^{99}Mo ПРИ ОПРОМІНЮВАННІ МІШЕНІ З ПРИРОДНОГО МОЛІБДЕНУ ЗМІШАНИМ γ ,n-ВИПРОМІНЕННЯМ

A.M. Довбня, В.В. Митроченко, В.І. Нікіфоров, С.А. Пережогін, А.Е. Тенішев, А.В. Торговкін, В.Л. Уваров, В.А. Шевченко, Б.І. Шраменко, Т.В. Малихіна

Ізотоп ^{99}mTc можна виробляти фотоядерним методом по реакції $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$. Використовуваний для її реалізації конвертер гальмівного випромінювання є одночасно джерелом фотонейтронів. Тому при опромінуванні мішені з природного молібдену потоком змішаного γ ,n-випромінювання можна чекати зростання виходу ^{99}Mo за рахунок підключення каналу $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Розроблено метод і пристрій, що забезпечують можливість вимірювання виходу ^{99}Mo в мішені з природного молібдену при її розміщенні усередині модератора нейтронів, а також без нього. На прискорювачі ЛУ-40м ННЦ ХФТІ проведені експериментальні дослідження в діапазоні енергій електронів 30...60 МеВ. Показано, що застосування модератора збільшує вихід ^{99}Mo до 30 %. Проведено комп'ютерне моделювання експерименту двома способами – з використанням програмної системи PENELOPE-2008, а також бібліотеки класів GEANT 4 9.4. Результати моделювання добре узгоджуються з експериментальними.