

## ИССЛЕДОВАНИЕ ПОЛЯ СМЕШАННОГО X,n-ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ ФОТОЯДЕРНОМ ПРОИЗВОДСТВЕ ИЗОТОПОВ

*Т.В. Малыхина<sup>1</sup>, А.А. Торговкин<sup>1</sup>, А.В. Торговкин, В.Л. Уваров, В.А. Шевченко, И.Н. Шляхов, Б.И. Шраменко*

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт», Харьков, Украина*

*<sup>1</sup>Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина, Харьков, Украина*

*E-mail: bshram@kipt.kharkov.ua*

Исследованы основные характеристики высокоэнергетичного тормозного (X) и нейтронного (n) излучения, возникающего при конвертировании пучка ускоренных электронов для фотоядерной генерации изотопов. Получены значения потока и плотности потока тормозного излучения для электронов с энергией 40 МэВ при толщине Та-конвертера 4 мм. Методом компьютерного моделирования с использованием библиотеки Geant4 (версия 8.2) получены данные о выходе тормозного излучения на 1 электрон ( $N_x/N_e \approx 0,55 \dots 0,8$  в диапазоне энергий фотонов 8...20 МэВ при энергии первичных электронов от 20 до 80 МэВ. Рассчитан выход нейтронов на один первичный электрон ( $N_n/N_e \approx 2,2 \cdot 10^{-3}$  при энергии электронов 40 МэВ. С помощью пороговых активационных детекторов (In, Ni, Al, Ge, Fe) экспериментально измерена величина потока нейтронов, которая составляет  $\sim 5 \cdot 10^{11}$  1/с при среднем токе пучка 5 мкА.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

При фотоядерном производстве изотопов важным является знание характеристик поля X,n-излучения, генерируемого пучком ускоренных электронов в тормозном конвертере. В зависимости от различных конструктивных особенностей облучательного устройства, таких как толщина и материал конвертера, объем окружающей конвертер охлаждающей воды, наличия в конструкции легких сплавов и др., формируемое радиационное поле может быть различным [1]. Основной по интенсивности компонентой потока смешанного X,n-излучения являются фотоны различного происхождения (тормозное излучение, кванты комптоновского рассеяния, аннигиляционные). Следующими по значимости компонентами являются электроны и нейтроны. Взаимодействие всех компонент радиационного поля с веществом приводит не только к наработке в мишенях целевых и побочных радионуклидов, но и активации конструкционных материалов выходных устройств.

При фотоядерном производстве изотопов вклад нейтронов, образующихся в конвертере, может быть как положительным (полезным), так и отрицательным. Так, при получении  $Tc^{99m}$  генераторным методом, первоначально в мишени (раствор соли природного молибдена) нарабатывается  $Mo^{99}$  по реакциям  $Mo^{100}(\gamma, n)Mo^{99}$  и  $Mo^{98}(n, \gamma)Mo^{99}$ . Наличие потока фотонейтронов позволяет увеличить выход полезного продукта на величину до 40% [2]. При наработке изотопа  $Cu^{67}$  по реакции  $Zn^{68}(\gamma, p)Cu^{67}$  в случае применения цинка естественного изотопного состава вклад реакции  $Zn^{67}(n, p)Cu^{67}$  незначителен из-за малого процентного содержания  $Zn^{67}$  (4,1%). Вместе с тем, реакция  $Zn^{68}(n, \alpha)Ni^{64}$  приводит к образованию стабильного изотопа никеля, ухудшающего чистоту готового продукта.

### 2. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК ИЗЛУЧЕНИЯ МЕТОДОМ МОДЕЛИРОВАНИЯ

2.1. Для определения потока тормозного и нейтронного излучения использовалось моделирование методом Монте-Карло процессов взаимодействия ускоренных электронов с тормозным конвертером различной толщины. Моделирование проводилось с использованием пакета библиотек Geant4 (версия 8.2), была выбрана модель низких энергий [3]. Для электронов учитывались процессы многократного рассеяния, ионизации, тормозного излучения, а также электроядерные процессы (G4ElectroNuclearReaction). Для гамма-квантов учитывались фотоэффект, комптоновский эффект, релеевское рассеяние, эффект рождения пар и фотоядерные процессы (G4GammaNuclearReaction). Геометрия моделируемого устройства соответствовала геометрии конвертера, использованного в эксперименте. Первичные электроны направлены по нормали к поверхности конвертера, диаметр пучка при моделировании составлял 12 мм с равномерным распределением по площади. Трехмерная модель облучательного устройства показана на Рис.1.

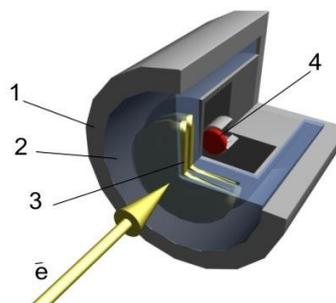


Рис.1. Трехмерная модель облучательного устройства: 1 - корпус; 2 – охлаждающая вода; 3 - конвертер; 4 - мишени

**2.2.** При отладке программного кода были получены пространственно-энергетические характеристики тормозных фотонов при энергии первичных электронов 45 МэВ, (см. Рис.2,3). Полученные результаты находятся в хорошем соответствии с известными данными [4].

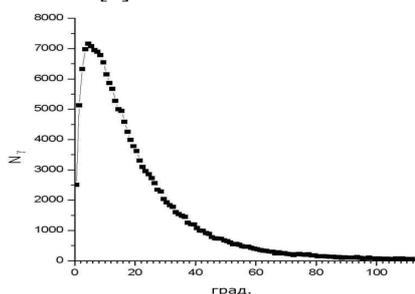


Рис.2. Угловое распределение тормозного излучения

В качестве материала конвертера были рассмотрены Au, Pt, Ir, Pb, Ta, W. Толщина конвертера в каждом случае выбиралась равной 4 мм. Наибольшая интенсивность тормозного излучения получена при расчетах с конвертером из иридия, а наименьшая – из свинца (на 34% меньше). Другие исследованные материалы дали промежуточные значения. Для дальнейших расчетов и экспериментов были выбраны тантал и вольфрам.

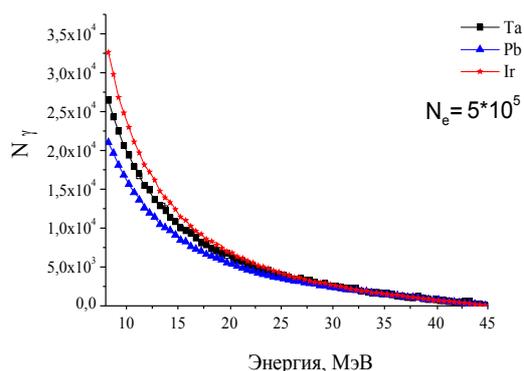


Рис.3. Энергетический спектр тормозного излучения

**2.3.** В результате моделирования были получены данные о выходе из Та-конвертера фотонов в диапазоне энергий 8...20 МэВ при энергии первичных электронов в диапазоне от 20 до 80 МэВ (см. Рис.4). Расчетный выход излучения на 1 электрон ( $N_\gamma/N_e$ ) в диапазоне энергий фотонов 8...20 МэВ немного изменяется в зависимости от параметров математической модели и находится в пределах (0,55...0,8)  $\gamma/e$ . Эти значения соответствуют потоку  $\gamma$ -квантов  $(1,6...2,4) \cdot 10^{13}$  1/с в условиях описанного ниже эксперимента (см. Рис.3).

На следующем этапе было проведено моделирование выхода нейтронов с энергией от 0,3 до 20 МэВ из вольфрама для следующей геометрии: цилиндр диаметром 25 мм, высотой 3,2 мм (поверхностная плотность 6,21 г/см<sup>2</sup>). Диапазон энергий первичных электронов – от 30 до 45 МэВ.

Полученные данные о выходе нейтронов на один первичный электрон ( $N_n/N_e$ ) находятся в хорошем соответствии с результатами других авторов [4, 5].

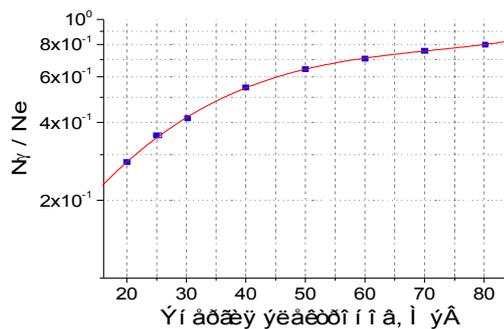


Рис.4. Зависимость выхода тормозного излучения из Та от энергии электронов

**2.4.** Протестированная таким образом программа позволила рассчитать выход нейтронов на один электрон в условиях, близких к планируемому эксперименту с конвертером толщиной 4 мм из различных материалов. В данной модели с целью упрощения расчетов не учитывалось влияние охлаждающей воды и бетонного бункера, в котором производился эксперимент, на величину потока нейтронов. Результаты моделирования представлены на Рис.5.

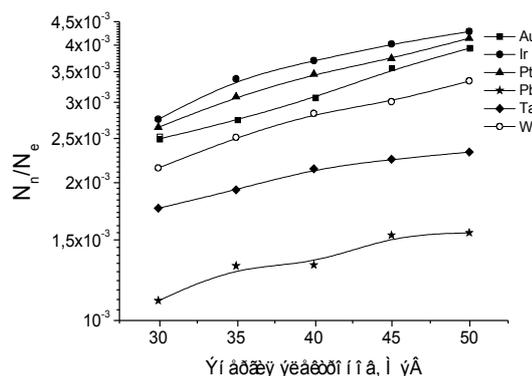


Рис.5. Зависимость выхода нейтронов от энергии электронов

**2.5.** При исследовании выхода излучения различной природы из конвертера важно знать, как изменяется отношение интенсивностей нейтронной и фотонной компонент ( $N_n/N_\gamma$ ) с увеличением начальной энергии электронов. Расчет показал, что эта зависимость для всех исследованных материалов имеет вид, близкий к показанному на Рис.6.

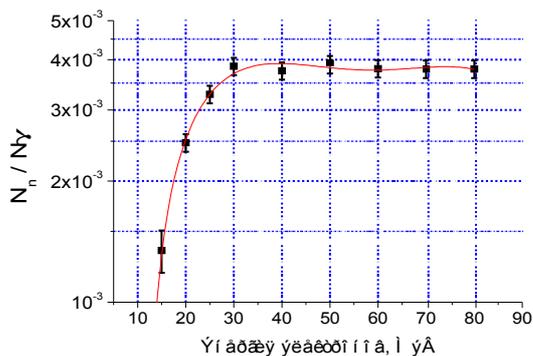


Рис.6. Зависимость отношения  $N_n / N_\gamma$  для Ta от энергии электронов

Она характеризуется тем, что величина  $N_n / N_\gamma$  для описанного конвертера мало меняется при увеличении энергии электронов от 30 до 80 МэВ.

Эту особенность можно использовать для оценки потока фотонейтронов. Например, экспериментально определив поток тормозных фотонов с энергией 8...20 МэВ гамма-радиоактивным методом, детекторами с различным порогом активации можно одновременно вычислить полный поток нейтронов от конвертера. При этом нет необходимости дополнительно использовать набор пороговых активационных детекторов и проводить трудоемкую операцию восстановления нейтронного спектра.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК ПОЛЯ X,n-ИЗЛУЧЕНИЯ

3.1. Исследование поля смешанного X,n-излучения проводилось с помощью облучательного устройства, схема которого приведена на Рис.7. Конструкция устройства позволяет, кроме мишеней для наработки нуклидов, облучать электронами и фотонами фольги-мониторы, предназначенные для измерения пространственного распределения потока тормозных фотонов. Фольги-мониторы в виде дисков диаметром 40 мм и толщиной 0,1 мм располагались в трех местах: перед конвертером, между конвертером и сборкой мишеней и за сборкой (по ходу пучка). Облученные фольги сканировались специально разработанным радиометрическим устройством, после чего восстанавливался профиль потока излучения [6]. На Рис.8 представлены результаты измерения активности на трех фольгах-мониторах вдоль горизонтальной оси, проходящей через центр фольг.

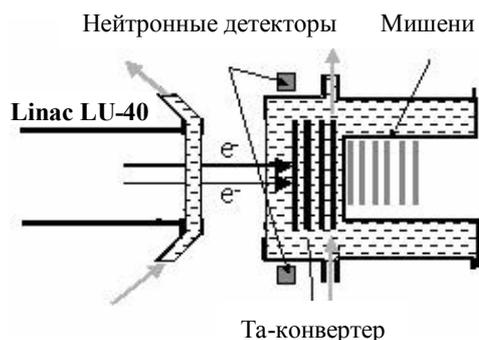


Рис.7. Схема облучательного устройства

Полученные результаты наглядно демонстрируют изменение геометрических размеров пучка вдоль облучательного устройства. Примененная методика позволяет, в частности, оценить площадь пучка активирующих частиц в месте расположения мишеней, определить "коэффициент использования" пучка мишенью, оперативно проверить качество юстировки устройства. Сравнивая распределение поверхностной активности фольг-мониторов, облученных на различном расстоянии от выходного окна ускорителя, можно определять также угловые характеристики пучка электронов, если облучение велось без конвертера, или тормозных фотонов, при облучении с конвертером.

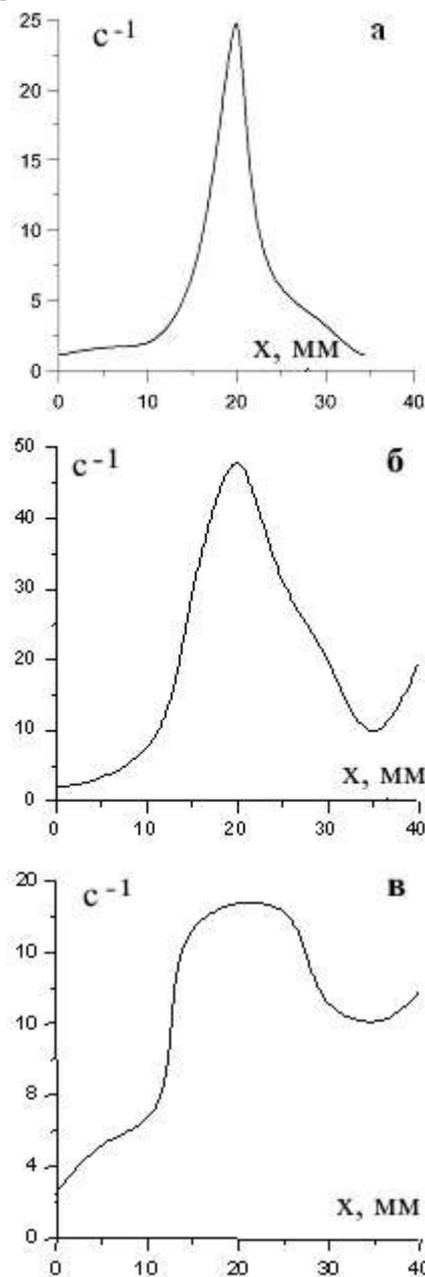


Рис.8. Распределение поверхностной активности Mo-фольг: а - перед конвертером, б - после конвертера, в - после сборки мишеней

**3.2.** Определение таких характеристик радиационного поля, как плотность потока активирующих частиц (отдельно для каждого типа частиц), спектрального распределения различных компонент производилось экспериментально, радиоактивным методом. Известно, что активность образца, помещенного в неизменный во времени однородный поток частиц, нарастает по закону:

$$A(t) = \frac{m}{\mu} \cdot N_{av} \cdot f \cdot \sigma \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t}), \quad (1)$$

где:  $m$  – масса мишенного изотопа в образце,  $\mu$  – молярная масса мишенного нуклида,  $N_{av}$  – число Авогадро,  $f$  – плотность потока активирующих частиц,  $\sigma$  – сечение активации,  $\lambda$  – постоянная распада нарабатываемого изотопа,  $t$  – время облучения. Помещая в сборку образцов (см. Рис.7) различные активационные детекторы и облучая их известное время при стабильном токе пучка, можно получить значение плотности потока и полного потока частиц. В Табл.1 представлены результаты определения потока тормозного излучения для следующих условий:

- конвертер – Та, 4 мм;
- энергия электронов – 40 МэВ;
- время облучения – 4 часа.

**Таблица 1.** Поток фотонов тормозного излучения, определенный различными детекторами

Реакция активации	Плотность потока, $1/\text{см}^2 \cdot \text{с}$	Поток в $2\pi$ , $1/\text{с}$ (ток 5 мкА)
$\text{Cu}^{65}(\gamma, n) \text{Cu}^{64}$	$7,06\text{E}+12$	$3,53\text{E}+13$
$\text{Fe}^{54}(\gamma, 2n) \text{Fe}^{52}$	$3,22\text{E}+12$	$1,61\text{E}+13$
$\text{Cr}^{52}(\gamma, n) \text{Cr}^{51}$	$5,76\text{E}+12$	$2,88\text{E}+13$
$\text{Ti}^{48}(\gamma, p) \text{Sc}^{47}$	$5,40\text{E}+12$	$2,70\text{E}+13$

**3.3.** Одновременно с облучением активационных детекторов для определения потока тормозного излучения при тех же параметрах пучка был проведен эксперимент по измерению потока нейтронов от мишенного устройства. Использовался метод пороговых детекторов в виде навесок различных элементов с порогами активации от 0,3 до 5,5 МэВ, которые располагались на расстоянии 4 см от конвертера под углом  $90^\circ$  к направлению пучка электронов.

Следует отметить, что экспериментально полученные таким образом данные по плотности потока и полному потоку нейтронов являются усредненными в энергетическом диапазоне для каждого типа детектора. Кроме того, при определении потока с помощью пороговых детекторов из In и J не было возможности точно учесть вклад сечения захвата в резонансной области энергий нейтронов. Для корректного сравнения экспериментальных и расчетных данных необходима информация о спектре нейтронов в месте расположения детекторов. Из литературных источников [4,5] известно, что спектр фотонейтронов из тяжелых мишеней приближенно описывается максвелловским распределением с максимумом в области 1...2 МэВ и близок к спектру

быстрых нейтронов реактора (б.н.р.). С учетом этого, в перечень активационных детекторов были включены Re и As – доступные элементы, для которых в литературе приводятся сечения активации нейтронами деления [5]. Эти детекторы, работающие на реакции захвата нейтрона, оказались наиболее удобными в использовании. Для исключения влияния тепловых нейтронов такие детекторы экранировались фольгой из кадмия толщиной 0,2 мм. В Табл. 2. приведены экспериментально измеренные значения полного потока нейтронов от конвертера при различной энергии электронов, нормированные на ток пучка 100 мкА.

Определив поток нейтронов, можно оценить активности целевых изотопов, нарабатываемые в реакциях с нейтронами. В Табл.3 приведены результаты таких расчетов для некоторых изотопов.

**Таблица 2.** Поток нейтронов от Та-конвертера при различной энергии пучка (ток 100 мкА)

	35 МэВ	40 МэВ	45 МэВ	55 МэВ
Реакция активации	Поток в $4\pi$ , $1/\text{с}$			
$\text{Re}^{187} \rightarrow \text{Re}^{188}$	$1,05 \cdot 10^{13}$		$1,22 \cdot 10^{13}$	$1,26 \cdot 10^{13}$
$\text{In}^{115} \rightarrow \text{In}^{116}$		$1,02 \cdot 10^{13}$		
$\text{J}^{127} \rightarrow \text{J}^{128}$		$1,40 \cdot 10^{13}$		
$\text{As}^{75} \rightarrow \text{As}^{76}$	$1,17 \cdot 10^{13}$			$2,53 \cdot 10^{13}$
$\text{In}^{115} \rightarrow \text{In}^{115m}$	$9,84 \cdot 10^{11}$	$7,23 \cdot 10^{11}$	$7,51 \cdot 10^{11}$	
$\text{Ni}^{58} \rightarrow \text{Co}^{58}$		$2,85 \cdot 10^{11}$	$5,78 \cdot 10^{11}$	
$\text{Al}^{27} \rightarrow \text{Mg}^{27}$		$9,02 \cdot 10^{11}$		
$\text{Ge}^{72} \rightarrow \text{Ga}^{72}$		$6,80 \cdot 10^{10}$		
$\text{Fe}^{56} \rightarrow \text{Mn}^{56}$		$7,40 \cdot 10^{10}$		
$\text{Al}^{27} \rightarrow \text{Na}^{24}$		$4,85 \cdot 10^{10}$		

**Таблица 3.** Расчет выхода целевых изотопов при воздействии фотонейтронов (энергия электронов 45 МэВ)

Реакция образования целевого изотопа	Нарабатываемая нейтронами активность, мкКи	Доля от полного выхода, %
$\text{Zn}^{67}(n, p) \text{Cu}^{67}$	0,0082	0,125
$\text{Mo}^{98}(n, \gamma) \text{Mo}^{99}$	0,0089	0,084
$\text{Mo}^{100}(n, 2n) \text{Mo}^{99}$	0,2012	1,895
$\text{Re}^{187}(n, \gamma) \text{Re}^{188}$	1,8345	96,653
$\text{Ni}^{58}(n, p) \text{Co}^{58}$	0,0096	19,613
$\text{Fe}^{56}(n, p) \text{Mn}^{56}$	5,7932	20,543

## ВЫВОДЫ

Проведенные исследования показали, что при фотоядерном производстве изотопов в большинстве случаев вклад реакций на нейтронах в выход целевого изотопа не превышает нескольких процентов. Вместе с тем, вклад фотонейтронов в наработку побочных радионуклидов в конструкционных материалах мишенного устройства может быть значитель-

ным (см. Табл. 3). При промышленном производстве изотопов интенсивный поток нейтронов вызывает активацию как выходных устройств ускорителя, так и расположенного рядом оборудования, что приводит к необходимости создания локальной радиационной защиты. Применяя конвертер из материала с пониженным выходом нейтронов (Pb, Ta) можно снизить поток нейтронов в 2-3 раза по сравнению с конвертерами из Pt, Au, Ir. При этом поток тормозного излучения уменьшается незначительно (~ на 35%).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. N.P. Dikiy, A.N. Dovbnya, Yu.V. Lyashko, et al. Production of medical isotopes at electron accelerators // *ВАНТ. Серия «Ядерно-физические исследования»* (36). 2000, №2, с.58-61.

2. V.L. Uvarov, N.P. Dikiy, A.N. Dovbnya. Electron Accelerator Based Production of Technetium-99m for Nuclear Medicine // *ВАНТ. Серия «Ядерно-физические исследования»* (42). 1997, с.123.
3. <http://geant4.cern.ch/>
4. В. Ковалев. *Вторичные излучения электронных ускорителей*. М.: «Атомиздат». 1978, 305с.
5. Н.А. Власов. *Нейтроны*. М.: "Наука", 1979. с.510.
6. S.P. Karasyov, V.I. Nikiforov, R.I. Pomatsalyuk, et al. High-intensity Bremsstrahlung Monitoring System for Photonuclear Technologies // *Tenth European Particle Accelerator Conference EPAC 2006*. Edinburgh, Scotland, 26 to 30 June, 2006. p.1235-1238.

*Статья поступила в редакцию 24.09.2007 г.*

#### THE RESEARCH OF MIXED X,n-RADIATION FIELD AT PHOTONUCLEAR ISOTOPES PRODUCTION

*T.V. Malykhina, A.A. Torgovkin, A.V. Torgovkin, V.L. Uvarov, V.A. Shevchenko, I.N. Shlyakhov, B.I. Shramenko*

The basic characteristics have been researched for high-energy bremsstrahlung and neutron radiation, created by conversion of the accelerated electrons. The values for bremsstrahlung flux and flux density have been obtained at electron energy of 40 MeV, and 4mm thickness of Ta converter. In the simulation the GEANT 4.8.2 package was used, the low-energy model has been chosen. The obtained value of bremsstrahlung yield per one electron is  $(N_\gamma/N_e) \approx 0.55 \dots 0.8$  in the range of 20...80 MeV for primary electrons and 8...20 MeV for secondary gammas. The obtained value of neutron yield per one electron is  $(N_n/N_e) \approx 2.2 \cdot 10^{-3}$  at the 40 MeV electron energy. The results for neutron and bremsstrahlung yield are in good agreement with reference data. Measuring of the neutron flux value was performed with use of threshold activation detectors (In, Ni, Al, Ge, Fe) and gave the value of  $5 \cdot 10^{11}$  1/s with average current of 5  $\mu$ A.

#### ДОСЛІДЖЕННЯ ПОЛЯ ЗМІШАНОГО X,n- ВИПРОМІНЕННЯ ПРИ ФОТОЯДЕРНОМУ ВИРОБНИЦТВІ ІЗОТОПІВ

*Т.В. Малихіна, О.О. Торговкін, О.В. Торговкін, В.Л. Уваров, В.А. Шевченко, І.М. Шляхов, Б.І. Шраменко*

Досліджено основні характеристики високоенергетичного гальмівного та нейтронного випромінювання, що виникає при конвертуванні пучка прискорених електронів для фотоядерної генерації ізоотопів. Одержано величини потоку та щільності потоку гальмівного випромінювання для електронів з енергією 40 MeV при товщині Та-конвертера 4 мм. Методом комп'ютерного моделювання з використанням бібліотеки Geant4 (версія 8.2) одержано дані щодо виходу гальмівного випромінювання на 1 електрон  $(N_\gamma/N_e) \approx 0,55 \dots 0,8$  у діапазоні енергій фотонів 8...20 MeV при енергії первинних електронів від 20 до 80 MeV. Розраховано вихід нейтронів на один первинний електрон  $(N_n/N_e) \approx 2,2 \cdot 10^{-3}$  при енергії електронів 40 MeV. За допомогою порогових активаційних детекторів (In, Ni, Al, Ge, Fe) експериментально виміряна величина потоку нейтронів, що складає  $\sim 5 \cdot 10^{11}$  1/с при середньому струмі пучка 5 мкА.