

# СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ФОТОЯДЕРНОЙ ГЕНЕРАЦИИ ИЗОТОПОВ В СХЕМАХ С КОНВЕРТЕРОМ И БЕЗ КОНВЕРТЕРА ТОРМОЗНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

*Н.И. Айзацкий, В.И. Никифоров, А.В. Торговкин, В.Л. Уваров, В.А. Шевченко,  
Б.И. Шраменко, D. Ehst<sup>1</sup>*

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

*<sup>1</sup>Argonne National Laboratory, USA*

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

При фотоядерном методе производства изотопов возникает вопрос о целесообразности предварительного конвертирования потока электронов в тормозное излучение. Изложены экспериментальные результаты и результаты исследования методом компьютерного моделирования сравнительной эффективности генерации изотопов в схемах с использованием конвертера и при прямом воздействии пучка электронов на мишень. Полученные распределения активности по глубине мишени позволяют оптимизировать её размеры и режим облучения для достижения максимума выхода изотопного продукта по общей и удельной активности.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Традиционно фотоядерный метод предусматривает использование промежуточной мишени-конвертера пучка ускоренных электронов в высокоэнергетичное тормозное излучение. Последним воздействуют на мишень, в которой в результате ( $\gamma, N$ )-реакций происходит генерация изотопного продукта. Ввиду сравнительно небольшого сечения таких реакций (~10...500 мбн) и большой длины пробега тормозных фотонов фотоядерные реакции протекают в значительном объёме (до десятков кубических сантиметров) [1,2]. Поэтому производство изотопов фотоядерным методом сопряжено с использованием мишеней большой массы (до 100 г) при относительно малой удельной активности изотопного продукта (как правило,  $\leq 100$  мКи/г) [3]. При прямом воздействии на такой объект пучком электронов с энергией выше порога фотоядерной реакции он является одновременно конвертером и мишенью [4]. Поэтому представляет интерес сравнительный анализ условий генерации изотопов в каждом из этих вариантов мишенного устройства (с конвертером и без него) в зависимости от энергии электронов и атомного номера материала мишени. С этой целью нами проведено изучение процессов наработки радионуклидов в таких схемах путём моделирования на ЭВМ и экспериментального измерения выхода изотопов в различных мишенях.

Для выделения наработанного нуклида желательна его высокая удельная активность при минимальной массе мишени. Поэтому представляет интерес распределение нарабатываемой активности по глубине мишени. Такие сведения были получены экспериментально.

## 2. МОДЕЛИРОВАНИЕ НАРАБОТКИ ИЗОТОПОВ <sup>47</sup>Sc, <sup>67</sup>Cu и <sup>111</sup>In

Для геометрических условий, близких к реальным, проведено компьютерное моделирование полного выхода изотопов <sup>47</sup>Sc, <sup>67</sup>Cu и <sup>111</sup>In в схемах с

конвертером и без него на основе программной системы PENELOPE/2006 [5]. В расчётах рассматривался конвертер из тантала толщиной 4 мм. В таблицах 1–4 представлены сравнительные данные активности изотопов, нарабатываемых в цилиндрических мишенях размером 4×4 см из природных титана (изотоп <sup>47</sup>Sc), цинка (изотоп <sup>67</sup>Cu) и олова (изотоп <sup>111</sup>In) за сутки при среднем токе пучка электронов 200 мкА для значений их энергий 30...45 МэВ.

*Таблица 1. Энергия электронов 30 МэВ*

Радионуклид	Общая активность, мКи (200 мкА·сут.)	
	С конвертером	Без конвертера
<sup>47</sup> Sc	254.3 ± 23	192.8 ± 12
<sup>67</sup> Cu	102.9 ± 8.4	101.6 ± 5.6
<sup>111</sup> In	151.8 ± 7.0	196.0 ± 5.2

*Таблица 2. Энергия электронов 35 МэВ*

Радионуклид	Общая активность, мКи (200 мкА·сут.)	
	С конвертером	Без конвертера
<sup>47</sup> Sc	412.0 ± 36	321.4 ± 18
<sup>67</sup> Cu	194.1 ± 15	194.0 ± 13
<sup>111</sup> In	207.8 ± 7.9	261.6 ± 6.8

*Таблица 3. Энергия электронов 40 МэВ*

Радионуклид	Общая активность, мКи (200 мкА·сут.)	
	С конвертером	Без конвертера
<sup>47</sup> Sc	589.4 ± 46	470.8 ± 26
<sup>67</sup> Cu	284.4 ± 21	274.8 ± 15
<sup>111</sup> In	254.9 ± 9.1	322.4 ± 7.6

*Таблица 4. Энергия электронов 45 МэВ*

Радионуклид	Общая активность, мКи (200 мкА·сут.)	
	С конвертером	Без конвертера
<sup>47</sup> Sc	700.4 ± 53	592.4 ± 31
<sup>67</sup> Cu	334.4 ± 26	385.7 ± 25
<sup>111</sup> In	307.1 ± 11	374.3 ± 8.7

Представленные результаты показывают, что максимальное превышение выхода изотопного продукта в мишени с конвертером для всех энергий наблюдается для лёгкой мишени (титан, Z=22). Сравнимые значения активности для обоих вариантов генерации изотопов имеют место для мишени больше-

го атомного номера (цинк,  $Z=30$ ). Для более тяжёлых мишеней (олово,  $Z=50$ ) использование конвертера приводит к снижению выхода изотопов.

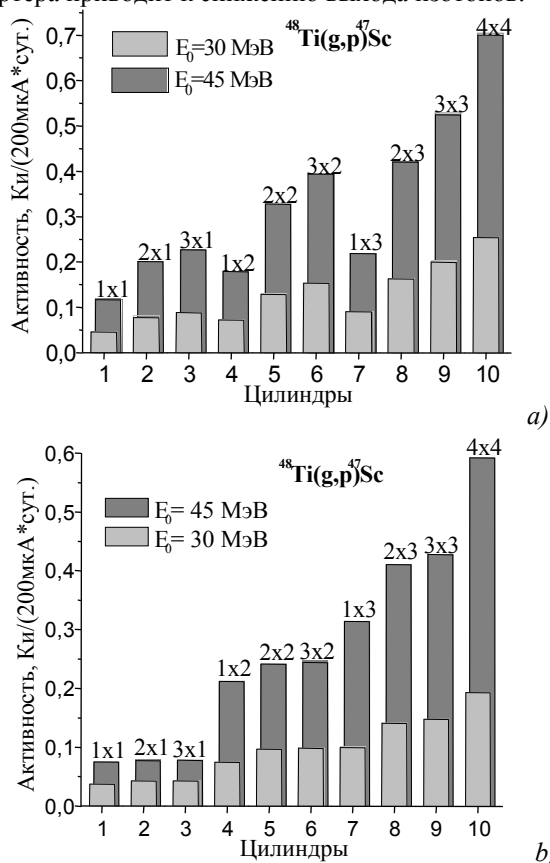


Рис.1. Сравнительная картина активности цилиндрических Ti-мишеней при энергии электронов 30 и 45 МэВ для схем активации с конвертером (а) и непосредственно пучком электронов (б)

На Рис.1. приведены данные моделирования выхода Sc-47 в наборе осесимметрических цилиндрических мишеней размером  $d \times h$ , где  $d$  – диаметр, а  $h$  – высота цилиндра (см) для каждого варианта генерации изотопа. Видно, что схема с конвертером обеспечивает более высокую удельную активность у мишеней малого размера.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ

#### 3.1. УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Для измерения фотоядерного выхода изотопов в мишенях большого объема при двух схемах их активации были отобраны медь и цинк, имеющие соседние атомные номера. Определялся выход  $^{64}\text{Cu}$  и  $^{67}\text{Cu}$  в реакциях  $^{65}\text{Cu}(\gamma, n)^{64}\text{Cu}$  и  $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$ .

Для этого были изготовлены мишени в виде сборки из дисков и фольг.

Конструкция мишенного устройства и условия облучения сборки образцов на ускорителе электронов представлены на Рис.2.

Конвертер из тантала со сборкой образцов охлаждались водой, что позволяло снять тепловую нагрузку  $\approx 0,5 \dots 1$  кВт. Для исследования выхода изотопов методом прямой активации мишени конвертером убирался.

Контроль положения и размера пучка гамма-квантов проводился путём сканирования профиля остаточной активности фольг из молибдена, устанавливаемых перед и за мишенным устройством.

Активность изотопов  $^{64}\text{Cu}$  ( $\gamma$ -линии 511 и 1315,76 кэВ) и  $^{67}\text{Cu}$  ( $\gamma$ -линия 184,6 кэВ) измерялась гамма-спектрометром на основе Ge(Li)-детектора (объём  $100 \text{ см}^3$ ; энергетическое разрешение 3 кэВ по образцовому источнику  $^{60}\text{Co}$ ) и процессора импульсных сигналов типа SBS-75.

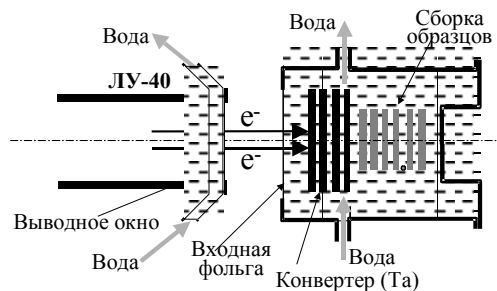


Рис.2. Схема облучения пучком электронов мишенного устройства со сборкой образцов (вариант с конвертером)

#### 3.2. ПРОСТРАНСТВЕННОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ АКТИВНОСТИ $^{64}\text{Cu}$

Изучение выхода изотопа  $^{64}\text{Cu}$  ( $T_{1/2} \approx 12,7$  ч.) выполнено в мишени из меди природного состава. Мишень-сборка представляла собой цилиндр диаметром 25 мм и длиной 36 мм, собранный из отдельных дисков толщиной 2 мм. Между дисками располагались тонкие медные "измерительные" фольги толщиной 0,05 мм, использовавшиеся в качестве образцов для измерения их активности после облучения.

Порядок установки "измерительных" фольг (по ходу пучка) был следующим:

- первая устанавливалась перед всей сборкой (что соответствует "нулевой" толщине мишени на Рис.3);
- следующие пять – после каждого диска толщиной 2 мм;
- последующие (7-12) – после каждых двух дисков толщиной 2 мм.

Толщина "измерительных" фольг выбиралась исходя из допустимых нагрузок детектора.

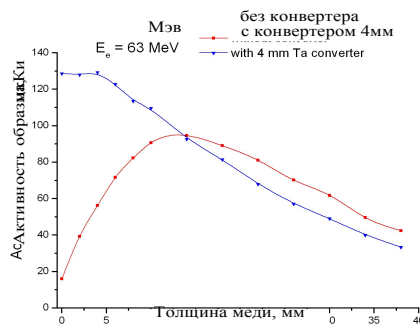


Рис.3. Распределение по глубине мишени активности изотопа  $^{64}\text{Cu}$  (в образцах толщиной 0,05мм). Из полученных данных следует, что полная активность изотопа  $^{64}\text{Cu}$  в мишени из меди в варианте с конвертером на 15 процентов больше, чем без него

Мишень-сборка из меди располагалась непосредственно за конвертером, расстояние между входной фольгой мишенного устройства и конвертером составляло 2 мм.

С целью поиска оптимальных условий генерации радионуклидов было выполнено измерение выхода изотопа  $^{64}\text{Cu}$  в схемах с конвертером (Та, толщиной 4 мм) и без него.

Облучение мишеней проводилось в режиме:

- энергия электронов - 63 МэВ,
- средний ток - 4,65 мкА,
- время облучения - 60 минут.

Результаты измерений показаны на Рис.3.

### 3.3. ПРОСТРАНСТВЕННОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ АКТИВНОСТИ $^{67}\text{Cu}$

Измерение выхода  $^{67}\text{Cu}$  выполнено на мишенях из цинка естественного состава с чистотой (99,999%).

Две одинаковые мишени-сборки, представляющие собой наборы из дисков диаметром 40 мм и толщиной 1 мм, облучались на ускорителе ЛУ-40 в режиме:

- энергия электронов - 49 МэВ,
- средний ток - 1 мкА,
- время экспозиции - 75 мин.

Различие условий активации состояло в том, что одна сборка (далее №1) облучалась непосредственно электронным пучком, а перед сборкой №2 устанавливался конвертер из тантала толщиной 2 мм. Общая толщина каждой мишени составляла 49 мм, что обеспечивало практически полное поглощение электронного пучка. После выдержки в течение 24 часов мишени демонтировались из облучательного устройства и активность изотопа  $^{67}\text{Cu}$  измерялась в каждом диске. Активность изотопа  $^{67}\text{Cu}$  (по  $\gamma$ -линии 184,6 кэВ) измерялась с помощью гамма-спектрометра (см. Рис.4). На Рис.5 приведена зависимость активности  $\text{Cu-67}$  в дисках от глубины их расположения в сборке.

Из полученных данных следует, что максимальное превышение полной активности в мишени с конвертером над активностью без него достигается на глубине первых 10 мм (~63%); для первых 15 мм такое превышение будет составлять ~40%.

Превышение полной активности всей мишени составляет 11,5%. Для мишеней высотой более 15 мм значения активностей с конвертером и без конвертера в пределах погрешностей измерений практически сравниваются.

Кроме изотопа  $\text{Cu}^{67}$  при облучении  $\text{Zn}$  в мишени образуются также активные изотопы цинка. Из них наиболее значимыми являются  $^{62}\text{Zn}$  ( $T_{1/2}=9,2$  часа),  $^{65}\text{Zn}$  ( $T_{1/2}=244$  сут.) и  $^{69\text{m}}\text{Zn}$  ( $T_{1/2}=14$  часов).  $^{63}\text{Zn}$  ( $T_{1/2}=38,1$  мин) имеет высокую активность, чем затрудняет демонтаж сборки и проведение измерений сразу после облучения. Однако по истечении 24 часов он практически полностью распадается.

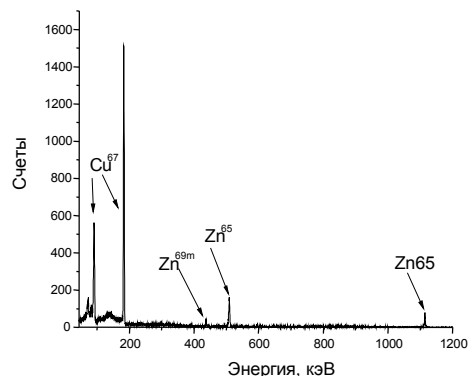


Рис.4. Спектр  $\gamma$ -излучения облученного образца  $\text{Zn}$

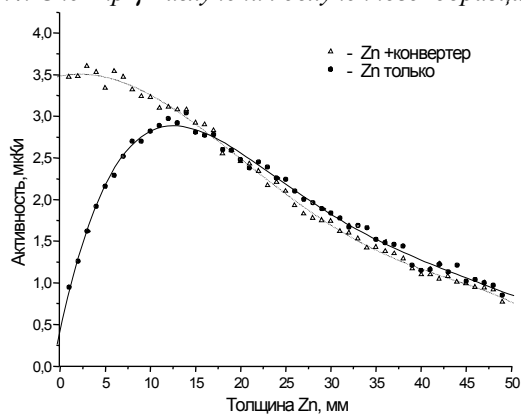


Рис.5. Распределение активности изотопа  $^{67}\text{Cu}$  по глубине мишеней  $\text{Zn}$ , облученных с конвертером и без него

Образующийся в малом количестве по реакции ( $\gamma$ ,  $n$ ) изотоп  $^{62}\text{Zn}$  ( $T_{1/2}=9,2$  часа) к моменту измерения активности дисков также в значительной мере распадается. В Табл.5 приведены активности основных изотопов, нарабатываемых в  $\text{Zn}$ -мишенях на различной глубине их расположения в сборке.

### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Несмотря на различие сечений ( $\gamma$ ,  $n$ )- и ( $\gamma$ ,  $p$ )-реакций на мишенях меди и цинка характер глубинных зависимостей выхода изотопов в этих мишенях оказывается подобным.

На примере экспериментального измерения "глубинного распределения" наработки изотопов  $^{64}\text{Cu}$  и  $^{67}\text{Cu}$  в объемных мишенях из меди и цинка природного изотопного состава показано, что применение конвертера по интегральной величине наработанной активности имеет преимущество (на 11-15% больше) по сравнению с прямой активацией мишени пучком электронов.

Таблица 5. Изотопный состав  $\text{Zn}$ -мишеней после облучения

Мишень/ Сборка	Активность (мк Ки)		
	$^{67}\text{Cu}$	$^{65}\text{Zn}$	$^{69\text{m}}\text{Zn}$
2 /№1	1,26	0,223	0,395
6 /№1	2,29	0,394	0,784
15 /№1	2,8	0,565	1,08
22 /№1	2,46	0,512	0,992
28 /№1	1,96	0,384	0,673
48 /№1	0,92	0,192	0,417
2 / №2	3,46	0,641	0,762

6 /№2	3,54	0,683	1,302
15 /№2	2,92	0,553	1,12
22 /№2	2,34	0,456	1,04
28 /№2	1,78	0,395	0,778
48 /№2	0,97	0,166	0,323

Превышение (на 11%) интегральной активности  $^{67}\text{Cu}$  в мишени цинка по сравнению с результатами моделирования получено с конвертером толщиной 2 мм. Эта толщина оказалась более оптимальной по сравнению с толщиной конвертера 4 мм, выбранной при моделировании.

Моделирование фотоядерной наработки изотопов показывает, что максимальное превышение (33%) выхода  $^{47}\text{Sc}$  достигается в схеме с использованием конвертера на сравнительно легкой мишени (титан,  $Z=22$ ). Использование конвертера для мишени со средним атомным номером обеспечивает активность, сравнимую с активностью мишени без конвертера. Снижение общей активности для более тяжелой мишени (олово  $Z=50$ ; изотоп  $^{111}\text{In}$ ) в случае с конвертером может свидетельствовать о неоптимальной толщине конвертера (4 мм), выбранной при моделировании.

Из экспериментальных данных по глубинной зависимости нарабатываемой активности в мишени, которые подтверждаются результатами моделирования, следует, что наибольшее значение удельных активностей имеет место для минимальных объемов ( $1 \times 1$ ;  $1 \times 2$  см) на начальных участках мишени (Рис.1,3,5). Представленные в Таб.5 данные показывают, что наряду с целевым изотопом  $^{67}\text{Cu}$  нарабатываются значительные активности примесей  $^{65}\text{Zn}$  и  $^{69\text{m}}\text{Zn}$ . Столь значительный выход изотопов по отношению к  $^{67}\text{Cu}$  обусловлен тем обстоятельством, что  $^{67}\text{Cu}$  нарабатывается, в основном, за счёт реакции  $^{68}\text{Zn}(\gamma, p)^{67}\text{Cu}$  и в значительно меньшей степени, согласно каналу  $^{67}\text{Zn}(n, p)^{67}\text{Cu}$ . В то же время примесные радионуклиды могут нарабатываться на стабильных изотопах  $^{64}\text{Zn}$ ,  $^{66}\text{Zn}$ ,  $^{67}\text{Zn}$ ,  $^{68}\text{Zn}$ ,  $^{70}\text{Zn}$  за счёт целого ряда реакций:  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, 2n)$ ,  $(\gamma, 3n)$ , а также на фотонейтронах:  $(n, 2n)$ - и  $(n, \gamma)$ -радиационный захват.

## COMPARATIVE ANALYSIS OF PHOTONUCLEAR ISOTOPE GENERATION IN THE CIRCUITS WITH AND WITHOUT THE BREMSSTRAHLUNG CONVERTER

*N.I. Ayzatsky, V.I. Nikiforov, A.V. Torgovkin, V.L. Uvarov, V.A. Shevchenko, B.I. Shramenko, D. Ehst*

The photonuclear method of isotope production is associated with the use of large-volume targets. This suggested the advisability of using the electron-to-bremsstrahlung converter. Experimental studies and computer simulation were made to compare the efficiency isotope generation in bulky targets with an intermediate converter and at direct exposure of the target to accelerated electrons. The data of activity distribution with a target depth allows choose of target thickness optimum and regime irradiation for a maximum isotopic product (total and specific activity) achievement.

## ПОРІВНЯЛЬНИЙ АНАЛІЗ ФОТОЯДЕРНОЇ ГЕНЕРАЦІЇ ІЗОТОПІВ У СХЕМАХ З КОНВЕРТЕРОМ ТА БЕЗ КОНВЕРТЕРА ГАЛЬМІВНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ

*М.І. Айзацький, В.І. Нікіфоров, О.В. Торговкін, В.Л. Уваров, В.А. Шевченко, Б.І. Шраменко, Д. Ехст*

При фотоядерному методі виробництва ізоотопів виникає питання про доцільність попереднього конвертування потоку електронів в гальмівне випромінювання. Викладено експериментальні результати і результати дослідження методом комп'ютерного моделювання порівняльної ефективності генерації ізоотопів в схемах з використанням конвертера та при безпосередній дії пучка електронів на мішень. Одержані розподіли активності по глибині мішені дозволяють оптимізувати її розміри та режим опромінювання для досягнення максимального виходу ізоотопного продукту по загальній та питомій активності.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментально и путём компьютерного моделирования изучены процессы наработки радионуклидов фотоядерным методом в мишенях естественного состава значительного объёма.

Показано, что увеличение общей активности "полезного продукта" в мишенях с малым и средними значениями атомного номера обеспечивается применением конвертера тормозного излучения.

Результаты моделирования показывают, что для мишеней с большим атомным номером применение конвертера приводит к снижению общей наработанной активности.

Полученные данные о распределении радионуклидов по глубине мишени позволяют выбрать оптимальные условия генерации целевого продукта.

Работа выполнена при поддержке НТЦУ, контракты №3151 и №P228.

## ЛИТЕРАТУРА

1. V. Piltingsrud, R. Hoops. Calculations of total activity // *Med. Phys.* 1987, v.14(3).
2. V. Piltingsrud. Design of a target system for producing clinically useful quantities of oxygen-15 using an electron linear accelerator // *Med. Phys.* 1982, v.9(4), p.514-520.
3. A.N. Dovbnya, N.P. Dikiy, V.I. Nikiforov, V.L. Uvarov. Conception of Medical Isotope Production at Electron Accelerator // *Tenth European Particle Accelerator Conference EPAC 2006 (Edinburgh, Scotland, 26 to 30 June, 2006)*, p.2343-2345.
4. K.I. Weeks, P.G.O' Shea. Production of Radioisotopes by Direct Electron Activation // *Med. Phys.* 1998, v.25(4), p.488-492.
5. F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea and I. Sempau. *PENELOPE-2006 A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport* (OECD Nuclear Energy Agency, Issyles-Moulineaux, France, 2006).

*Статья поступила в редакцию 21.09.2007 г.*