

ИССЛЕДОВАНИЕ УСЛОВИЙ ПРОИЗВОДСТВА ^{192}Ir НА УСКОРИТЕЛЕ ЭЛЕКТРОНОВ

*А. Н. Довбня, Ю. В. Рогов, А. Э. Тенишев, А. В. Торговкин,
В. Л. Уваров¹, В. А. Шевченко, Б. И. Шраменко*

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

Обсуждаются условия получения изотопа ^{192}Ir по безреакторной технологии на основе реакции $^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$. Ее можно реализовать путем облучения мишени из природного иридия потоком высокоэнергетического тормозного излучения ускорителя электронов. Показана возможность увеличения фотоядерного выхода целевого изотопа путем подключения реакции $^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$ на замедленных фотонейтронах. Для этого конвертер тормозного излучения и мишень помещают внутри модератора нейтронов. Экспериментально и методом компьютерного моделирования получены данные по выходу ^{192}Ir и примесей при использовании модератора нейтронов и без него.

The communication deals with the conditions of the ^{192}Ir isotope production under a non-reactor technology via the $^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$ reaction. It can be realized by irradiation of a target from natural iridium with high-energy X-ray of an electron accelerator. A possibility to increase the photonuclear yield of the target isotope by addition of the $^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$ reaction induced by moderated photoneutrons has been shown. For this, an X-ray converter and a target were placed inside a neutron moderator. The data on the ^{192}Ir and admixture yields for the techniques using the moderator and without it have been obtained by a computer simulation and experimentally.

PACS: 07.85.-m; 81-40wx; 87.53-j

ВВЕДЕНИЕ

Радионуклидные источники на основе изотопа ^{192}Ir ($T_{1/2} = 73,8$ сут; $E_{\beta} = 0,67$ МэВ; $\bar{E}_{\gamma} = 380$ кэВ) используются в медицине (брахитерапия опухолей) и промышленности (гамма-дефектоскопия). Этот изотоп производят главным образом в ядерных реакторах по реакции $^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$. В качестве мишеней используют соединения Na_2IrCl_6 [1] или иридиевую проволоку [2]. Для производства ^{192}Ir без носителя было также предложено использовать циклотронный метод на основе реакции $^{192}\text{Os}(p, n)^{192}\text{Ir}$ [3].

¹E-mail: uvarov@kipt.kharkov.ua

Как известно, природный иридий состоит из двух стабильных изотопов: ^{193}Ir (62,7 %) и ^{191}Ir (37,3 %). Ранее была показана принципиальная возможность получения ^{192}Ir по реакции $^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$, имеющей порог 7,8 МэВ [4]. Поток высокоэнергетических фотонов можно получать на относительно недорогих ускорителях электронов путем конвертирования их пучка в тормозное X -излучение. Этот процесс может быть реализован как в отдельном устройстве-конвертере, так и непосредственно в самой изотопной мишени. При этом область конверсии $e \rightarrow X$ в результате происходящих в ней (γ, n) -реакций является также квазиизотропным источником нейтронов. Например, при использовании тантала в качестве материала конвертера основной такой реакцией является $^{181}\text{Ta}(\gamma, n)^{180m}\text{Ta}$. Величина потока фотонейтронов составляет $\sim 10^{12} \text{ с}^{-1}$ на каждый киловатт мощности пучка электронов [5]. Таким образом, при фотоядерном производстве ^{192}Ir появляется возможность увеличения его выхода в мишени из природного иридия за счет добавления реакции радиационного захвата фотонейтрона ядром ^{191}Ir . Поскольку ее сечение возрастает от ~ 100 мб при энергии нейтронов ~ 100 кэВ до $\sim 10^3$ б в тепловой области, было предложено поместить конвертер и мишень внутри модератора нейтронов.

В работе исследован выход ^{192}Ir и основных примесей в природном иридии, а также их зависимость от условий облучения мишени на ускорителе электронов.

1. МИШЕННОЕ УСТРОЙСТВО

Для измерения выхода ^{192}Ir при облучении мишени смешанным X, n -излучением с модератором нейтронов и без него было разработано выходное устройство, схема которого приведена на рисунке. Устройство включает патрубок I из алюминия, соосный с пучком электронов ускорителя A . В патрубке I размещены конвертер тормозного излучения C и мишень T . Конвертер состоит из четырех танталовых пластин диаметром 30 мм и толщиной 1 мм каждая, разделенных такими же воздушными промежутками для охлаждения. Мишенное устройство включает находящиеся в алюминиевой обойме 3 фиксирующие диски $4, 8$ из алюминия диаметром 20 мм и толщиной 3 мм каждый с помещенными между ними фольгой-монитором 5 из молибдена толщиной 0,1 мм и шайбой 6 из алю-

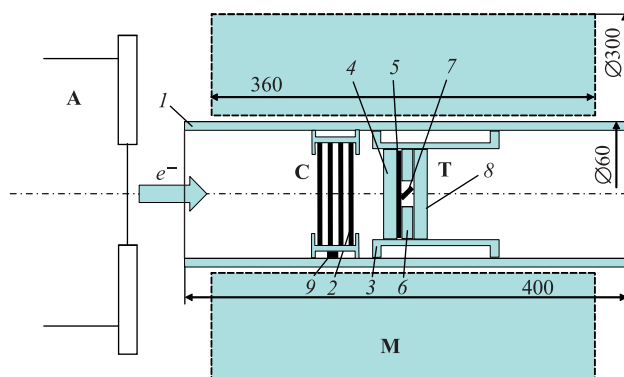


Схема выходного устройства

миния толщиной 3 мм с отверстием диаметром 6 мм, в котором размещалась мишень 7 (отрезок иридиевой проволоки диаметром 0,2 мм).

Контроль флюенса высокоэнергетических фотонов на основной мишени 7 производился по выходу референтных реакций в фольге-мониторе 5. Так, природный молибден включает семь стабильных изотопов, в том числе ^{92}Mo (14,84 %), ^{98}Mo (24,13 %) и ^{100}Mo (9,63 %). При активации мишенного устройства на каждый из них действует смешанный поток тормозных фотонов и нейтронов. Флюенс фотонов можно оценить по выходу ^{90}Mo ($T_{1/2} = 5,7$ ч) из реакции $^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo}$, поскольку ^{90}Mo может накапливаться только в этом канале. В свою очередь, изотоп ^{99}Mo ($T_{1/2} = 66,02$ ч) может генерироваться сразу в двух реакциях: $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ и $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Таким образом, сопоставление выходов ^{90}Mo и ^{99}Mo , нормированных по заряду пучка электронов на конвертере, позволяет производить оценку вклада каждого из каналов.

Для измерения выхода изотопов в условиях совместного воздействия тормозного излучения и замедленных фотонейтронов патрубков с конвертером и мишенью помещался внутри модератора М. Его детальное описание приведено в работе [6].

2. УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Облучение мишеней производилось на ускорителе ЛУ-40 ННЦ ХФТИ [7] в течение 2 ч при энергии электронов 40 МэВ, длительности импульса пучка 1,5 мкс, частоте следования импульсов 50 Гц и среднем токе пучка 4 мкА. Профиль пучка на конвертере соответствовал распределению Гаусса с шириной на полувысоте 1,2 см. Ширина энергетического спектра пучка на полувысоте не превышала 2 %. После каждой экспозиции мишени выдерживались в течение 24 ч для спада наведенной активности, обусловленной короткоживущими примесями, а затем извлекались из выходного устройства и переносились в лабораторию для проведения измерений.

Определение активности изотопов в образцах проводилось гамма-спектрометром на основе детектора Canberra HPGe с анализатором InSpector-2000 и программным обеспечением Genie 2000. Относительная эффективность регистрации детектором 20 % и энергетическое разрешение 1,8 кэВ при энергии фотонов 1332 кэВ (Co-60). Погрешность определения удельной активности изотопов находилась в пределах 7–10 %. Полученные данные нормировались на величину заряда пучка электронов при активации мишени.

Независимый анализ процессов фотоактивации мишени проводился методом моделирования на основе модифицированного транспортного кода PENELOPE-2008 [8]. Сечения реакций были заимствованы из базы данных [9]. Моделирование процессов активации нейтронами не проводилось.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В табл. 1 приведены данные по выходу изотопов в иридии и фольгах-мониторах, полученные методом моделирования и экспериментально для режимов активации мишеней без модератора (Ir-7/1, Mo-5/1) и с модератором (Ir-7/2, Mo-5/2). В последнем случае в точке выходного устройства 9 (см. рисунок) размещался еще один образец иридия (Ir-9)

так, что расстояние от него до оси пучка соответствовало расстоянию образца Ir-7/2 до конвертера (см. рисунок). Таким образом, если на образцы Ir-7/1, Ir-7/2 действовал поток смешанного X, n -излучения с испарительным и теплым спектрами фотонейтронов соответственно, то на Ir-9 — преимущественно только фотонейтроны.

Анализ данных табл. 1 показывает, что результаты моделирования и эксперимента по выходу изотопов в фотоядерных каналах генерации ^{192}Ir , ^{190}Ir и ^{90}Mo удовлетворительно согласуются. Увеличение выхода ^{192}Ir (\sim на 50%) и ^{99}Mo (\sim на 10%) в схеме с модератором можно объяснить вкладом реакций радиационного захвата замедленных нейтронов на изотопах ^{191}Ir и ^{98}Mo соответственно. Вместе с тем сравнение полученных значений для ^{192}Ir , ^{190}Ir и ^{194}Ir в мишенях Ir-7/2 и Ir-9 показывает превышение ожидаемого выхода изотопов ^{192}Ir и ^{194}Ir на оси излучения, находящееся за пределами погрешности измерений. Возможным объяснением является возбуждение тормозными фотонами в иридии короткоживущих низколежащих изомерных состояний, сечения (n, γ) - и (γ, n) -реакций которых существенно возрастают. В частности, наличие подобного уровня с энергией возбуждения 6,24 кэВ обнаружено в ядре ^{181}Ta [10]. Следует при этом отметить, что длительность банча пучка ускорителя ЛУ-40 составляет ~ 1 пс. Таким образом, импульсное значение плотности потока надпороговых тормозных фотонов на мишени $\sim 10^{19} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, а фотонейтронов $\sim 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$.

Таблица 1. Нормированный выход изотопов в элементах мишенного устройства

Мишень	Изотоп	$T_{1/2}$, сут	Реакция получения	Выход, мкКи/г · мкА · ч	
				Результаты моделирования	Результаты эксперимента
Ir-7/1	^{192}Ir	73,8	$^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$	2,26	2,06
	^{190}Ir	11,8	$^{191}\text{Ir}(\gamma, n)^{190}\text{Ir}$	8,27	8,14
	^{194}Ir	0,8	$^{193}\text{Ir}(n, \gamma)^{194}\text{Ir}$	—	0,26
Ir-7/2	^{192}Ir	73,8	$^{193}\text{Ir}(\gamma, n)^{192}\text{Ir}$	2,26	3,27
			$^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$	—	
	^{190}Ir	11,8	$^{191}\text{Ir}(\gamma, n)^{190}\text{Ir}$	8,27	11,83
	^{194}Ir	0,8	$^{193}\text{Ir}(n, \gamma)^{194}\text{Ir}$	—	6,06
Ir-9	^{192}Ir	73,8	$^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$	—	0,39
	^{190}Ir	11,8	$^{191}\text{Ir}(\gamma, n)^{190}\text{Ir}$	—	0,12
	^{194}Ir	0,8	$^{193}\text{Ir}(n, \gamma)^{194}\text{Ir}$	—	4,54
Mo-5/1	^{99}Mo	2,75	$^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$	4,69	5,06
			$^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$	—	
	^{90}Mo	0,24	$^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo}$	1,56	1,64
Mo-5/2	^{99}Mo	2,75	$^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$	4,69	5,48
			$^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$	—	
	^{90}Mo	0,24	$^{92}\text{Mo}(\gamma, 2n)^{90}\text{Mo}$	1,56	1,48

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В табл. 2 приведены результаты сравнительного анализа производительности различных технологий получения ^{192}Ir . Видно, что в отношении удельной активности реакторный метод обладает явным преимуществом. Циклотронная технология даже при мощном пучке протонов не обеспечивает достаточный выход изотопного продукта.

Таблица 2. Сравнительный анализ различных технологий производства ^{192}Ir

Установка	Параметры установки	Мишень	Основная реакция	Сечение, б	Выход, МБк/ч	Удельный выход, МБк/ч · г
Реактор [1]	$1,5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Na_2IrCl_6 ; Ir-провода	$^{191}\text{Ir}(n, \gamma)$ ^{192}Ir	954	74	> 1000
Циклотрон [3]	16 → 8 МэВ, 600 мкА	^{192}Os	$^{192}\text{Os}(p, n)$ ^{192}Ir	0,06	185	Без носителя
Ускоритель электронов [12]	40 МэВ, 250 мкА	Ir-конвертер 4 мм [11]	$^{193}\text{Ir}(\gamma, n)$ ^{192}Ir	0,5	740	> 10
		Ta-конвертер 4 мм, Ir-мишень $2 \times 2 \text{ см}$ [4]	$^{193}\text{Ir}(\gamma, n)$ ^{192}Ir	0,5	~ 600	~ 4
		Ta-конвертер 4 мм, Ir-мишень $2 \times 2 \text{ см}$, модератор нейтронов	$^{193}\text{Ir}(\gamma, n)$ ^{192}Ir $^{191}\text{Ir}(n, \gamma)$ ^{192}Ir	0,5 ~ 10^3	~ 900	~ 6

В свою очередь, производство ^{192}Ir на ускорителе электронов может быть реализовано с использованием различных вариантов выходного устройства: по традиционной схеме с конвертером (например, из тантала) и изотопной мишенью [4], непосредственно в конвертере из иридия с одновременной наработкой других изотопов в размещенных за конвертером мишенях [11], а также с использованием модератора нейтронов.

Таким образом, по сравнению с реакторной фотоядерная технология обеспечивает получение большего выхода ^{192}Ir , но при меньшей его удельной активности и более высоком уровне примесей в основном ^{190}Ir . Их содержание можно снизить более чем на порядок величины путем оптимизации режима «активация–охлаждение» мишени, а также при использовании иридия, обогащенного по изотопу ^{193}Ir .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ananthkrishnan M. Iridium-192 // Manual for Reactor Produced Radioisotopes. IAEA-TECDOC-1340. 2003. P. 116.
2. Schaeken B. et al. ^{192}Ir Brachytherapy Sources in Belgian Hospitals // Nucl. Instr. Meth. A. 1992. V. 312. P. 251–256.
3. Hilgers K., Sudar S., Qaim S.M. Experimental Study and Nuclear Model Calculations on the $^{192}\text{Os}(p, n)^{192}\text{Ir}$ Reaction: Comparison of Reactor and Cyclotron Production of the Therapeutic Radionuclide ^{192}Ir // Appl. Rad. Isot. 2005. V. 63. P. 93–98.

4. *Nikiforov V.I., Uvarov V.L.* Method for Estimation of Isotope Yield in a Thick Target under Photonuclear Production // Nucl. Instr. Meth. B. 2011. V. 269. P. 3149–3152.
5. *Малыхина Т.В. и др.* Исследование поля смешанного X, n -излучения при фотоядерном производстве изотопов // ВАНТ. Сер. «Ядерно-физ. исслед.». 2008. № 5(50). С. 184–188.
6. *Uvarov V.L. et al.* Two-Channel Mode of Mo-99 Production at an Electron Accelerator // Proc. of Conf. IPAC 2011, San Sebastian, Spain, 2011. P. 3627–3629.
7. *Айзацкий Н.И. и др.* Ядерно-физический комплекс на основе линейного ускорителя электронов с энергией до 100 МэВ // ВАНТ. Сер. «Ядерно-физ. исслед.». 2010. № 2(53). С. 18–22.
8. *Salvat F., Fernández-Varea J.M., Sempau J.* PENELOPE-2008 a Code System for Monte-Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. OECD Nucl. Ener. Agency. Issy-les-Moulineaux, France, 2008.
9. Handbook on Photonuclear Data for Applications. IAEA. TECDOC-1178. 2000.
10. *Дикий Н.П. и др.* Возбуждение низколежащего изомерного уровня ядра ^{181}Ta релятивистскими электронами // ВАНТ. Сер. «Ядерно-физ. исслед.». 2013. № 3(60). С. 175–178.
11. *Довбня А.Н., Никифоров В.И., Уваров В.Л.* Концепция мультиизотопного производства на базе ускорителя электронов // Письма в ЭЧАЯ. 2012. Т. 9, № 4–5(174–175). С. 706–711.
12. *Айзацкий Н.И. и др.* Мощный линейный ускоритель электронов с энергией до 40 МэВ // ВАНТ. Сер. «Ядерно-физ. исслед.». 2008. № 3(49). С. 25–29.