

ИЗУЧЕНИЕ И ОБОСНОВАНИЕ ПРОЦЕССА НАРАБОТКИ ИЗОТОПА Тс-99М НА ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИХ РЕАКТОРАХ БАСЕЙНОВОГО ТИПА

RESEARCH AND SUBSTANTIATION OF THE PROCESS OF WORKING ISOTOPE TC-99M IN RESEARCH REACTORS OF BASIN TYPE

Ю. Ю. Николаев

Iu. Nikolaev

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

Russian Federal Nuclear Center –All-Russia Scientific Research Institute of Experimental Physics

В настоящее время существует необходимость в более подробном изучении радиационно-захватного способа получения ^{99}Mo по реакции $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$, имеющий основной недостаток – низкую удельную активность получаемого радионуклида. Цель работы – оптимизация процесса накопления ^{99}Mo для повышения эффективности его наработки путем модификации ловушки нейтронов реактора типа ИРТ. Под эффективностью наработки ^{99}Mo понимается ядерная концентрация ^{99}Mo на 5 сутки облучения, отнесенная к 1 г загруженной мишени. Расчет параметров производится в программных комплексах WIMS и MCU, работа которых основана на методе Монте-Карло.

At present, there is a need for a more detailed study of the radiation capture method of obtaining ^{99}Mo by the $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ reaction, which has the main disadvantage - the low specific activity of the radioisotope obtained. The goal of the work is to optimize the accumulation process of ^{99}Mo to increase the efficiency of its production by modifying the reactor neutron trap of the IRT type. The ^{99}Mo operating efficiency is understood as the nuclear concentration of ^{99}Mo on the 5th day of irradiation, referred to 1 g of the loaded target. The parameters are calculated in the WIMS and MCU software complexes, the work of which is based on the Monte Carlo method.

В настоящее время до 80 % диагностических процедур в мире осуществляется с помощью $^{99\text{m}}\text{Tc}$, который образуется при распаде материнского радионуклида ^{99}Mo . Широкое применение $^{99\text{m}}\text{Tc}$ объясняется сочетанием его ядерных свойств: удобная для регистрации энергия гамма-излучения (140 кэВ), малый период полураспада, отсутствие бета- и жесткого гамма-излучения. Для получения молибдена при помощи ядерных реакторов используют две ведущие реакции: реакция деления урана-235 – $^{235}\text{U}(n,f)^{99}\text{Mo}$ и реакция радиационного захвата $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$. Сегодня более 95 % радионуклида ^{99}Mo производится с использованием урана с высоким обогащением по реакции деления. Главный недостаток данного способа заключается в том, что работа с продуктами деления требует дорогостоящего оборудования и захоронения большого количества РАО. Кроме того, в международном сообществе складывается консенсус о необходимости ограничить оборот высокообогащенного урана в гражданской сфере.

Именно поэтому в настоящее время возникла необходимость в более подробном изучении радиационно-захватного способа получения ^{99}Mo по реакции $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$. Данный метод имеет ряд преимуществ: дешевизна исходного сырья, исключение из технологического оборота делящихся материалов, отсутствие долгоживущих радиоактивных отходов, значительное снижение капитальных затрат и простота химических операций по извлечению продукта реакции. Однако, существует главный недостаток, который заключается в низкой удельной активности получаемого радионуклида. Чтобы исключить конкурирующее поглощение за счет ^{95}Mo и ^{97}Mo и повысить эффективность реакции необходимо использовать обогащенный до значений 90 % по 98 изотопу молибден. Так же проведенные на реакторе ИРТ-Т исследования показали, что удельная активность ^{99}Mo может быть повышена до 12–15 Ки/г за счет увеличения резонансной составляющей в нейтронном спектре реактора. Так как реакция захвата имеет резонанс в области 425 и 465 эВ.

Расчет параметров производится в программных комплексах WIMS и MCU, работа которых основана на методе Монте-Карло. В качестве мишени в расчетах использовался оксид молибдена с обогащением 98 % по ^{98}Mo . Радиус экспериментального канала реактора ИРТ-Тсоставляет 2,4 см. Бериллиевая ловушка нейтронов имеет форму параллелепипеда со сторонами 13,8×13,8 см и отверстием радиусом 5 см.

Расчеты показали, что применяемый на практике канал радиусом 2,4 см является оптимальным, так как увеличение канала приводит к незначительному (4 %) увеличению плотности потока резонансных нейтронов.

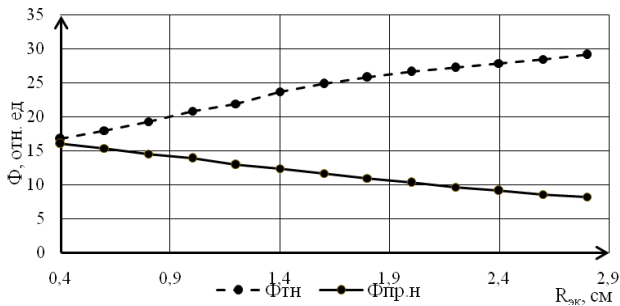


Рис. 1. Зависимость плотности потока нейтронов от радиуса ЭК

Расчет зависимости плотности потока резонансных нейтронов проводился в зависимости от площади поперечного сечения бериллиевой ловушки нейтронов. Зависимость аппроксимирована линией тренда 3 порядка.

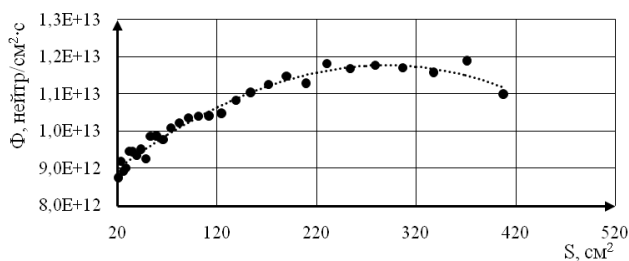


Рис. 2. Зависимость потока резонансных нейтронов от площади ловушки

Анализ результатов показывает, что исходную конфигурацию ловушки нейтронов размером 13,8×13,8 см можно считать оптимальной, т. к. дальнейшее увеличение размеров ловушки не приводит к значительному увеличению плотности потока.

Цель работы – оптимизация процесса накопления ^{99}Mo для повышения эффективности его наработки. Под эффективностью наработки ^{99}Mo

понимается удельная концентрация изотопа в момент времени ($C_{\text{уд}}$, ядер/г), а именно ядерная концентрация ^{99}Mo на 5 сутки облучения, отнесенная к 1 г загруженной мишени.

В работе рассмотрены 5 вариантов облучения мишени:

1. Облучение в 4 экспериментальных каналах;
2. Облучение в 2 экспериментальных каналах;
3. Один экспериментальный канал в геометрическом центре ловушки;
4. Один экспериментальный канал в геометрическом центре ловушки, конструкция мишени с добавлением втулки из замедлителя;
5. Исходная конфигурация нейтронной ловушки, конструкция мишени с добавлением втулки из замедлителя.

Исходная конфигурация облучения представлена на рис. 3. Бериллиевая ловушка представляет собой 4 блока, каждый из которых имеет отверстие для экспериментальных каналов. Облучение мишеней при этом происходит в двух каналах, расположенных по диагонали друг к другу.

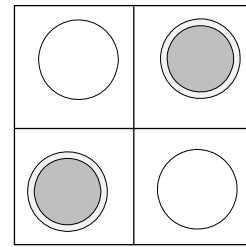


Рис. 3. Исходная геометрия бериллиевой ловушки

Учитывая то, что при поглощении нейтронов в мишени резонансные нейтроны поглощаются в поверхностном слое, было решено рассмотреть процесс облучения, когда вещество – мишень располагается на поверхности облучаемого устройства, а в середине помещается слабозамедляющее вещество. Добавление в центр материала-замедлителя нейтронов позволяет увеличить потока резонансных нейтронов. Предложенная конфигурация с добавлением графитового вытеснителя представлена на рис. 4.

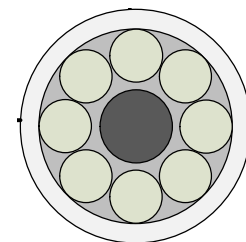


Рис. 4. Дробленная мишень с графитовым вытеснителем

Разделим полученные результаты расчетов на две категории: с изменением компоновки активной зоны и без изменения компоновки активной зоны. На рис. 5 представлена зависимость удельной концентрации молибдена от времени облучения в экспериментальных каналах. Рассмотрена конфигурация размещения экспериментального канала в геометрическом центре ловушки нейтронов и с использованием втулки из графита.

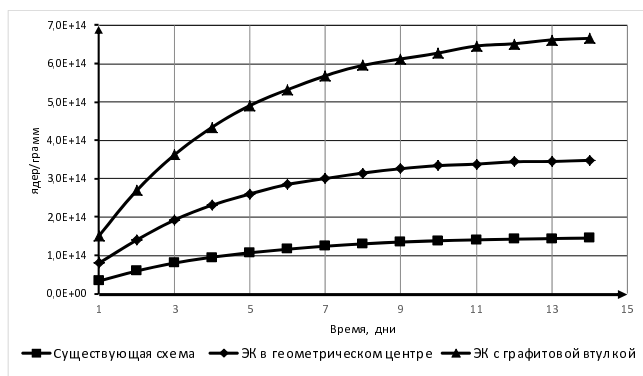


Рис. 5. Зависимость удельной концентрации молибдена от времени облучения

Использование одного центрального канала в геометрическом центре активной зоны позволяет увеличить эффективность наработки радиоизотопов приблизительно в 2,5 раза на пятые сутки, а вынесение частиц молибдена на поверхностный слой мишени и добавление втулки из замедлителя (в данном случае графита) повышает эффективность облучения в 5 раз. Такое увеличение эффективности облучения объясняется снижением эффекта самоэкранировки мишени, а также увеличением плотности потока резонансных нейтронов. Увеличение плотности потока нейтронов достигается за счет увеличения доли бериллия и добавления в центр мишени вытеснителя из замедлителя графита.

Далее рассмотрим менее затратный метод повышения эффективности путем сохранения конфигурации ловушки нейтронов.

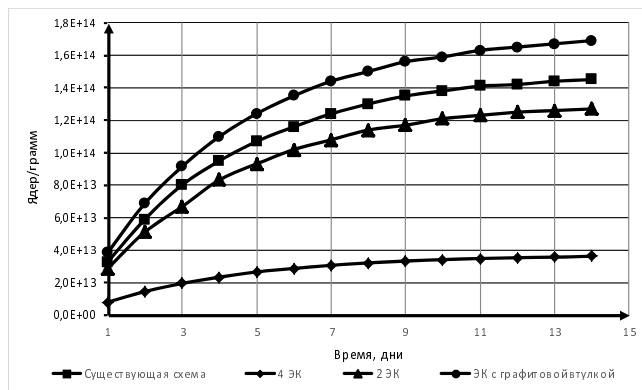


Рис. 6. Зависимость удельной концентрации молибдена от времени облучения

Использование мишени свитеснителемприсохранении существующей в настоящий момент конфигурации активной зоны позволяет повысить эффективность облучения на 16 %. Остальные варианты наработки молибдена в экспериментальных каналах не позволяет повысить эффективность и не являются перспективными для дальнейшего изучения.

Список литературы

1. Кодина Г. Е. Методы получения радиофармацевтических препаратов и радионуклидных генераторов для медицины // В кн. ИЗОТОПЫ. Свойства. Получение. Применение / Под ред. В. Ю. Баранова. М.: Физматлит. Т. 2. 2005. С. 389–412.
2. Герасимов А. С., Киселев Г. В., Ланцов М. И. Получение ^{99}Mo в ядерных реакторах // Атомная энергетика, 1989. August. Vol. 67, № 2. С. 104–108.
3. Скуридин В. С. Методы и технологии получения радиофармпрепаратов. – Томск: ТПУ, 2015. С. 139.
4. Шкаровский Д. А. Описание применения и инструкция для пользователей программ, собранных из модулей пакета MCU-5. М.: МИФИ, 2012. С. 11.
5. Нестеров Е. А. Разработка сорбционных генераторов технеция $^{99\text{m}}\text{Tc}$ на основе обогащенного ^{98}Mo . Томск, 2014.