

УДК 621.384

ОПТИМИЗАЦИЯ МИШЕННОГО УСТРОЙСТВА ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ ДЛЯ МАКСИМАЛЬНОЙ НАРАБОТКИ ^{99}Mo

В.А. Цымбал¹, Н.Д. Масалитин¹, С.А. Письменецкий², В.Г. Рудычев²,
Е.В. Рудычев¹, А.Ф. Стоянов¹

¹Национальный Научный Центр «Харьковский физико-технический институт»,
г. Харьков, ул. Академическая, 1, Украина

²Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина,
г. Харьков, пл. Свободы, 4, Украина

E-mail: rud@pht.univer.kharkov.ua

Поступила в редакцию октября 2009 г.

С использованием компьютерного моделирования проанализирован вариант конструкции мишенного устройства для Be(d,n)-генератора нейтронов, предназначенного для получения ^{99}Mo по реакции $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$. Показано, что максимальную плотность потока нейтронов в ограниченном объеме и необходимую трансформацию спектра обеспечивает замедлитель из бериллия, который кроме замедления осуществляет размножение за счет реакции (n,2n). Сравниваются эффективности замедлителей из полиэтилена и бериллия. Предложена методика определения места размещения и формы облучаемого образца молибдена для наработки в нем максимального количества ^{99}Mo . Расчеты выполнены в пакете MCNP с использованием геометрической модели мишенного устройства. Определены абсолютные значения наработки ^{99}Mo и проведено сравнение результата численных результатов с зависимостью, полученной в модельном подходе.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: Монте-Карло моделирование, мишень нейтронного генератора, замедление нейтронов, бериллий, полиэтилен, выход радиоактивного молибдена, оптимизация.

OPTIMIZATION OF THE TARGET ARRANGEMENT FOR THE NEUTRON SOURCE FOR THE BEST PRODUCING ^{99}Mo

V.A. Tsymbal¹, N.D. Masalitin¹, S.A. Pismenetskiy², V.G. Rudychev², Y.V. Rudychev¹, A.F. Stoyanov¹

¹National Scientific Center, Kharkov Institute of Physics and Technology, Kharkov
1, Akademicheskaja st., 61108, Kharkiv, Ukraine

²V.N. Karazin Kharkov National University, Kharkov
4, Svoboda sq., 61077, Kharkiv, Ukraine

With computer simulation using a version of the target structure has been analyzed for the Be(d,n) neutron generator aimed to produce ^{99}Mo along the reaction $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$. It was shown the biggest neutron density and the needed transformation of their spectrum in the limited volume the beryllium moderator can provide, which in addition realizes the neutrons multiplication in (n,2n) reaction. The parameters of polyethylene and beryllium moderators have been compared. The technique is proposed for the determination of the geometrical point and the form of the irradiated specimen for the maximal producing of ^{99}Mo . The calculations have been executed with MCNP code on the base of geometrical model of the target arrangement. Absolute values of ^{99}Mo output have been determined and were compared from analytic and digital estimations.

KEY WORDS: Monte-Carlo simulation, target for neutron generator, neutron moderation, beryllium, polyethylene, output of radioactive molybdenum, optimization.

ОПТИМІЗАЦІЯ МІШЕННОГО ПРИБОРУ ДЖЕРЕЛА НЕЙТРОНІВ ДЛЯ МАКСИМАЛЬНОГО НАПРАЦЮВАННЯ ^{99}Mo

В.О. Цимбал¹, М.Д. Масалітін¹, С.О. Письменецкий², В.Г. Рудичев², Е.В. Рудичев¹, О.Ф. Стоянов¹

¹Національний НАУКОВИЙ ЦЕНТР «Харківський фізико-технічний інститут»
г. Харків, вул. Академічна, 1, Україна

²Харківський національний університет ім. В. Н. Каразіна
м. Харків, пл. Свободи, 4, Україна

З використанням комп'ютерного моделювання проаналізовано варіант конструкції мішенного пристрою для Be(d,n)-генератора нейтронів, призначеного для отримання ^{99}Mo по реакції $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$. Показано, що максимальна щільність потоку нейтронів в обмеженому об'ємі і потрібну трансформацію спектру забезпечує сповільнювач з берилію, який окрім уповільнення здійснює розмноження за рахунок реакції (n,2n). Порівняні параметри сповільнювачів з поліетилену, графіту і берилію. Запропоновано методику визначення місця розташування і форми опромінюваного зразка з молибдену для напрацювання в ньому максимальної кількості ^{99}Mo . Розрахунки виконані в пакеті MCNP на основі геометричної моделі мішенного пристрою. Визначено абсолютні кількості напрацьованого ^{99}Mo і проведено порівняння числових результатів із залежностями, отриманими в модельному підході.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: Монте-Карло моделювання, мішень нейтронного генератора, сповільнення нейтронів, берилій, графіт, поліетилен, вихід радіоактивного молибдену, оптимізація.

Одним из широко применяемых в медицине является ядерный изотоп $^{99\text{m}}\text{Tc}$ с периодом полураспада 6ч, образующийся как дочернее ядро при бета-распаде ^{99}Mo , который происходит за 2,75д. Природный молибден состоит из 7 стабильных изотопов, среди которых, в частности, ^{96}Mo (16,68%), ^{97}Mo (9,55%), ^{98}Mo (24,13%),

^{100}Mo (9,63%).

В настоящее время основным методом получения ^{99}Mo является его наработка в исследовательских реакторах [1] на основе реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Но такой процесс сопровождается образованием значительного количества радиоактивных примесей, которые приходится удалять радиохимическими методами. В связи с этим в последнее время интенсивно разрабатываются методики получения ^{99}Tc с использованием ускорителей электронов [2, 3]. После конверсии энергии электронов в тормозное излучение осуществляется реакция $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$, порог которой равен 8,3 МэВ. Так как образующиеся фотонейтроны являются быстрыми, а сечение радиационного захвата $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ больше для тепловых и резонансных нейтронов, то в [1] было предложено увеличить эффективность наработки ^{99}Mo за счет нейтронов, испускаемых в той же реакции, и использовать водный раствор солей молибдена в качестве дополнительной мишени. При этом в водном растворе происходит эффективное замедление нейтронов и образование дополнительного количества ^{99}Mo .

В данной работе анализируются возможности наработки изотопа ^{99}Mo по реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ на каскадном генераторе, описанном в [4] и ускоряющем дейтроны до энергии 2,5 МэВ, снабженным специально сконструированным мишенным устройством (реакция $^9\text{Be}(d, n)^{10}\text{B}$). В [4] исследованы характеристики потока нейтронов, образующегося в таком источнике. Показано, что энергии первичных нейтронов при использовании толстой мишени и $E_d = 2,5 \text{ МэВ}$ заключены в интервале $\sim (1 \div 7) \text{ МэВ}$.

Для эффективного осуществления реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ необходимо уменьшить энергию первичных нейтронов до значений, близких к тепловым, т.к. сечение радиационного захвата максимально для резонансных и тепловых нейтронов.

Целью настоящей работы является оптимизация геометрических и конструктивных параметров варианта конструкции мишенного устройства для максимальной наработки ^{99}Mo , выполненная на основе расчетов методами Монте-Карло.

КОНСТРУКЦИЯ МИШЕННОГО УСТРОЙСТВА И МЕТОДИКА РАСЧЕТА

Непосредственно источник первичных нейтронов представляет собой полый конус из меди, на внутреннюю поверхность которого нанесен слой бериллия толщиной не менее 60 мкм. Высота конуса 20 см, диаметр 8 см. Дейтроны с энергией 2,5 МэВ бомбардируют внутреннюю поверхность конуса в направлении его оси, полный пробег их в бериллии не превышает 40 мкм. В результате реакции $^9\text{Be}(d, n)^{10}\text{B}$ на всей внутренней поверхности образуются первичные нейтроны, которые с определенной долей анизотропии относительно направления движения дейтрона вылетают в окружающее пространство [4].

Расчетные спектры первичных нейтронов для углов вылета 0° , 90° и 180° относительно направления движения дейтрона показаны на рис. 1.

На рис. 2 представлено сечение реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ [5]. Из рисунка видно, что сечение для тепловых нейтронов составляет около 0,26, область резонансов занимает интервал от 10 эВ до 5 кэВ, а при энергиях порядка 1 МэВ сечение радиационного захвата уменьшается до 10^{-2} барна.

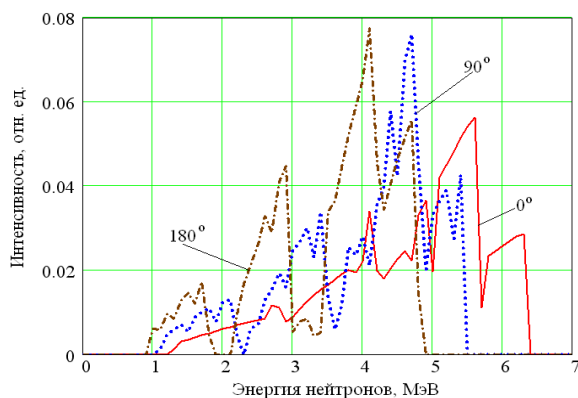


Рис. 1. Расчетные спектры первичных нейтронов для углов вылета 0° , 90° и 180° относительно направления движения дейтрона [4].

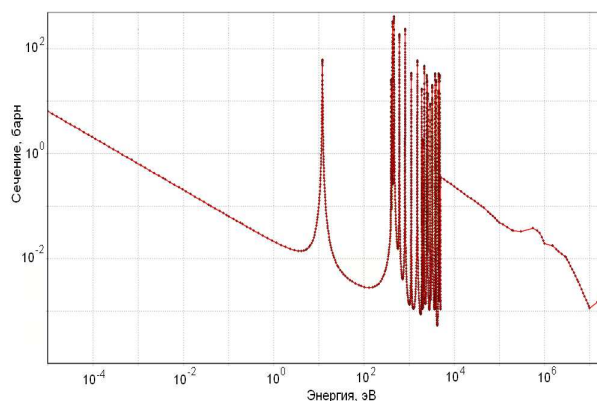


Рис. 2. Сечение реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ [5].

Нами было выполнено сравнение замедляющих свойств конструкции мишенного устройства из полиэтилена и бериллия, как двух часто используемых материалов-замедлителей. Ниже в табл. 1 приведены для ряда материалов значения замедляющих способностей $\xi \cdot \Sigma_s$ и коэффициентов замедления $\xi \cdot \Sigma_s / \Sigma_a$, усредненные в интервале энергий нейтронов от 1 эВ до 400 кэВ [6].

Из данных, приведенных в табл. 1, видно, что тяжелая вода является лучшим замедлителем, но практически недоступна из-за высокой стоимости. Для бериллия, графита и полиэтилена коэффициенты замедления весьма близки.

В ряде задач переноса нейтронов, например, при расчете активных зон реакторов (большие объемы и

количества материалов) применяется метод дискретных координат, основанный на решении дифференциальных уравнений, описывающих поведение нейтронов в веществе в одномерной или двумерной геометрии. Однако наиболее адекватным современным методом расчета полей замедляющихся нейтронов в реальной трехмерной геометрии, обычно сложной, содержащей различные материалы и не обладающей симметрией, является метод Монте-Карло моделирования.

Таблица 1. Замедляющие способности материалов для быстрых нейтронов и коэффициенты замедления

Замедлитель	$\xi \cdot \Sigma_s$	$\xi \cdot \Sigma_s / \Sigma_a$
Вода	1,28	58
Тяжелая вода	0,18	21000
Бериллий	0,16	130
Графит	0,064	200
Полиэтилен (C ₂ H ₄)	3,26	122

Для выполнения расчетов транспорта нейтронов в данной работе была использована верифицированная программа MCNP, представляющая собой многоцелевой код для расчета транспорта частиц в веществе, реализованный на базе методов Монте-Карло.

Пространственная модель мишенного устройства содержит: а) собственно мишень – полый бериллиевый конус на подложке из меди, охлаждаемый водой, б) замедлитель, окружающий мишень, в) отражатель, окруженный снаружи всю конструкцию. Источником нейтронов является внутренняя поверхность конуса, в каждой точке которой происходит их испускание. Спектры первичных нейтронов для разных углов вылета [4], представленные на рис. 1, используются в качестве исходных данных при выполнении расчета.

На рис.3а приведено распределение флюенса нейтронов в сечении мишенного устройства с замедлителем из полиэтилена. Отметим, что окружение мишенного устройства цилиндрическим отражателем из графита, приводит к повышению плотности потока на периферии на 30-35 % , а непосредственно вблизи мишени на 10-15%. На рис. 3б приведены распределения флюенса нейтронов (н/см² на 1000 первичных нейтронов) для мишенного устройства с замедлителем из бериллия, окруженного графитовым отражателем. Сравнение плотностей потоков в мишенных устройствах с замедлителями из бериллия и полиэтилена показывают, что замедлитель из бериллия дает большую плотность потока нейтронов по всему объему мишенного устройства, особенно на периферии.

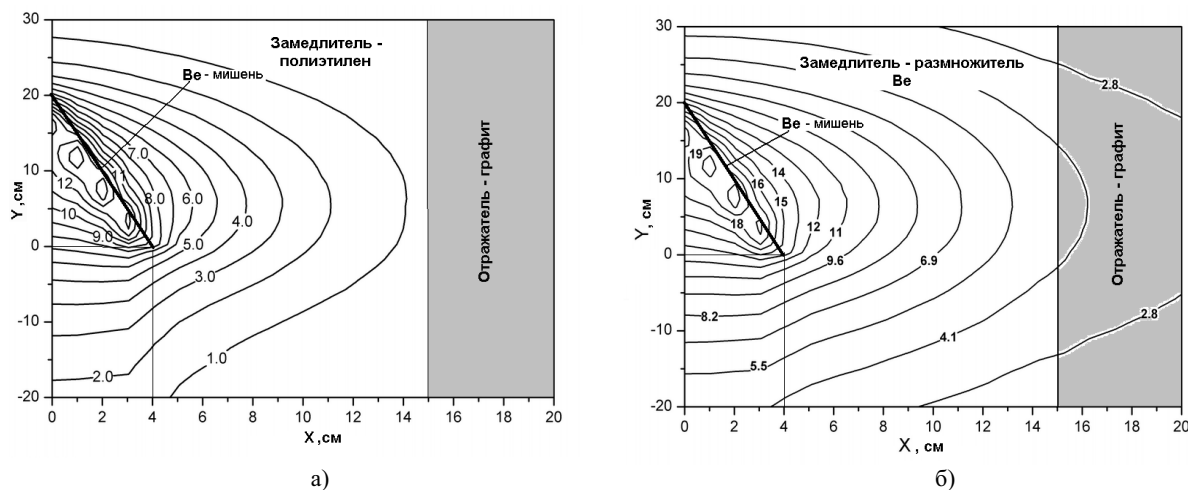


Рис. 3. Распределение флюенса нейтронов в мишенном устройстве

а) замедлитель из полиэтилена, б) замедлитель из бериллия. Изображены линии постоянного флюенса в вертикальной плоскости, проходящей через ось конуса. Цифры у кривых – значения флюенса на 1000 первичных нейтронов.

Заметная разница в плотностях потоков нейтронов связана, на наш взгляд, с тем, что в бериллии идет дополнительная генерация нейтронов по реакции (n,2n), имеющей пороговую энергию 1,85 МэВ. Сечение этой реакции при энергии нейтронов около 4 МэВ достигает 0,56 и далее остается постоянным (см. рис. 4а). На рис.4б показано распределение по энергиям нейтронов в реакции (n,2n) вылетающих под разными углами относительно направления движения первичного нейтрона (в данном случае энергия первичного нейтрона 4.5 МэВ). Данные для рис. 4 а,б заимствованы из [5].

Из приведенных данных о величине сечения следует, что число вторичных нейтронов достаточно велико (дает прибавку около 60% к числу первичных нейтронов), из-за того, что большая часть первичных нейтронов имеет энергию выше порога реакции (n,2n). Кроме того, при одном акте взаимодействия резко изменяется энергия нейтронов. При энергии первичных нейтронов 4,5МэВ средняя энергия нейтронов, испускаемых в

реакции (n,2n) (см. рис. 4б), составляет при их вылете под углами 10° , 60° и 150° - 1.35, 1.22 и 0.62 МэВ, соответственно. Вторичные нейтроны образуются непосредственно в замедлителе и сразу же включаются в процесс термализации.

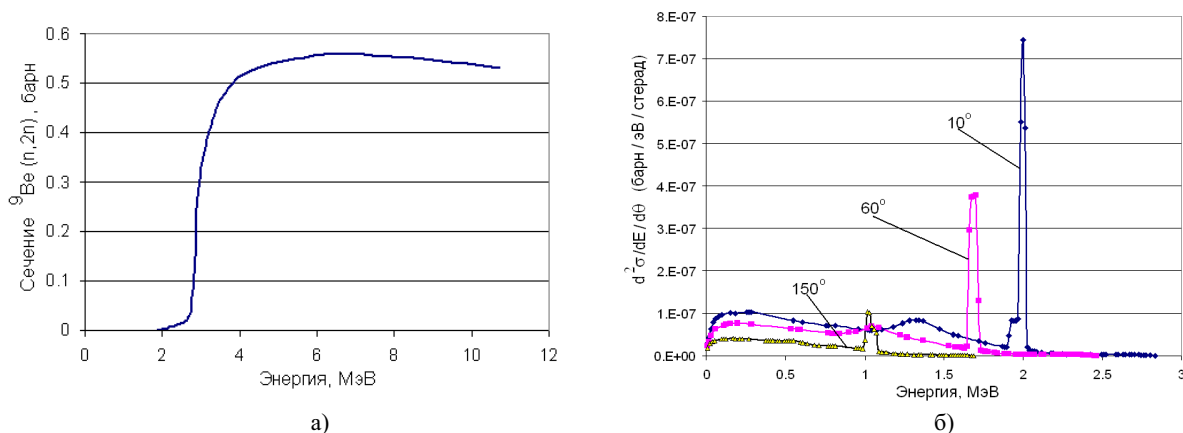


Рис. 4. Полное сечение и спектр вылетающих нейтронов реакции (n,2n) на бериллии [5].

а) полное сечение, б) распределение по энергиям нейтронов вылетающих под разными углами относительно направления движения первичного нейтрона

Таким образом, из рассмотренных материалов замедлителя в мишенном устройстве наиболее эффективен бериллий, причем для уменьшения утечки нейтронов блок замедлителя целесообразно окружить отражателем из графита.

ОПТИМИЗАЦИЯ НАРАБОТКИ ^{99}Mo

Очевидно, что форма облучаемого образца природного молибдена, в котором происходит образование ^{99}Mo , должна иметь аксиальную симметрию, т.е. окружать мишень со всех сторон. Кроме этого желательно, чтобы образец имел оптимальные геометрические размеры, размещался в зоне с максимальной однородностью нейтронного потока и нейтронным спектром, дающим наибольший выход реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Исходя из распределения потока нейтронов, формируемого мишенью в форме конуса (рис. 3), облучаемый образец молибдена оптимальной формы должен иметь вид усеченного конуса с определенной толщиной стенки, образующая которого параллельна образующей конуса мишени.

Исходя из выше приведенных соображений, были рассчитаны спектральные распределения потоков нейтронов, усредненные вдоль линии, параллельной образующей конуса мишени. На рис. 5 приведены зависимости плотности потока нейтронов от энергии на различных расстояниях от боковой поверхности конуса мишени. Из приведенных данных видно, что плотность потока нейтронов падает при удалении от мишени, а также растет доля нейтронов с низкой энергией. Используя данные о плотностях потоков и сечении реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ (рис. 2), были получены зависимости наработки ^{99}Mo на 1 первичный нейтрон от энергии, образующегося в объеме облучаемого образца на разных расстояниях от конуса, приведенные на рис. 6.

Различие спектрального состава нейтронов на разных расстояниях приводит к тому, что в наработку ^{99}Mo при размещении облучаемого образца вблизи мишени основной вклад вносят нейтроны из резонансной области ($100 \div 10000$ эВ). При удалении от мишени основной вклад вносят нейтроны с энергиями меньшей 1 эВ. Интегрирование удельной наработки ^{99}Mo по энергиям дает зависимость суммарной наработки от расстояния до поверхности мишени. Эта зависимость приведена на рис. 7 и практически линейно спадает с увеличением расстояния от поверхности источника. Резкий спад вблизи отражателя, обусловлен, по всей видимости, утечкой нейтронов из области бериллиевого замедлителя - размножителя.

Количество ^{99}Mo будет пропорционально объему природного молибдена в облучаемом образце в форме полого усеченного конуса. Расчеты показывают, что при толщине стенки конуса-образца менее 1 см, неоднородность наработки ^{99}Mo не превышает 10% практически во всех точках замедлителя. При постоянной толщине конического образца его объем растет линейно с увеличением расстояния от поверхности конуса-мишени.

Соответственно, масса наработанного ^{99}Mo будет пропорциональна - объему усеченного полого конуса и суммарной наработке. Масса ^{99}Mo в усеченном полом конусе с толщиной стенок 1 см в зависимости от расстояния до поверхности конуса мишени приведена на рис. 7 и имеет максимум на расстоянии около 8 см. Данный расчет, естественно, выполнен в относительных единицах и не учитывает бета-распад образующегося ^{99}Mo .

Пакет MCNP позволяет непосредственно рассчитывать накопление ^{99}Mo из природного молибдена с учетом процентного содержания ^{98}Mo . Для геометрии мишенного устройства показанного на рис.8 выполнены расчеты наработки ^{99}Mo , приведенные на рис.9.

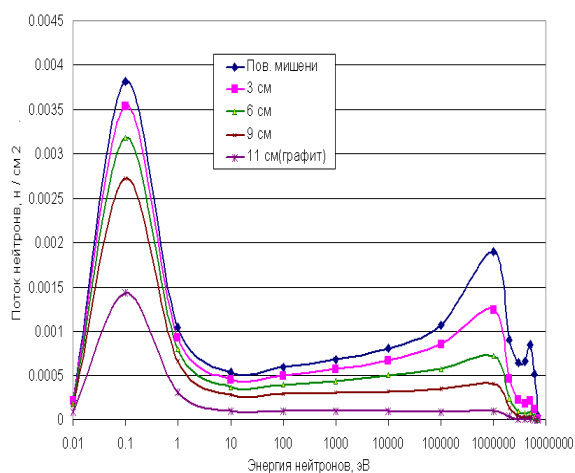


Рис. 5. Зависимость флюенса нейтронов от энергии на разных расстояниях от внешнего конуса мишени (расчет по MCNP).

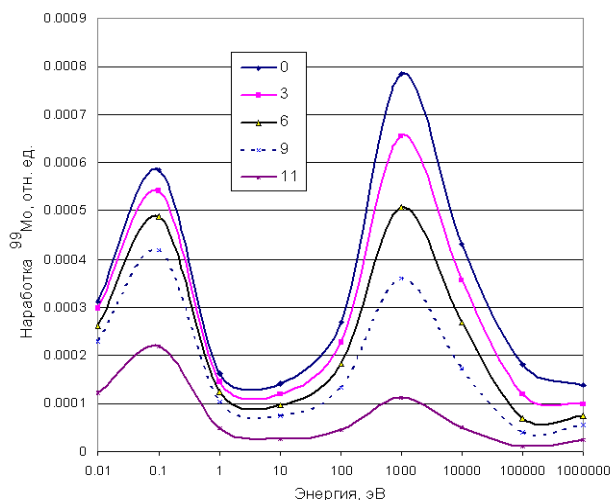


Рис. 6. Зависимости наработки ^{99}Mo на 1 первичный нейтрон от энергии, образующегося в объеме облучаемого образца на разных расстояниях от конуса.

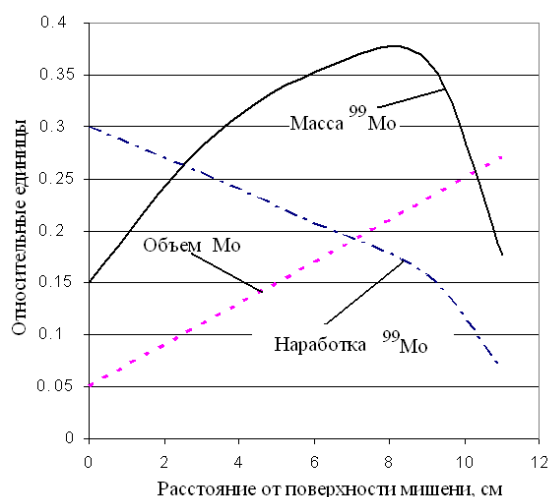


Рис. 7. Изменение объема молибдена, наработки и массы ^{99}Mo в зависимости от расстояния до поверхности мишени.

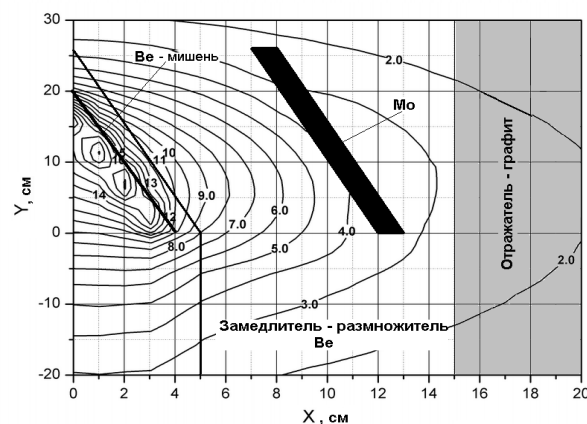


Рис. 8. Размещение облучаемого образца из природного молибдена в объеме мишенного устройства. Вид в плоскости сечения, проходящей через ось конуса.

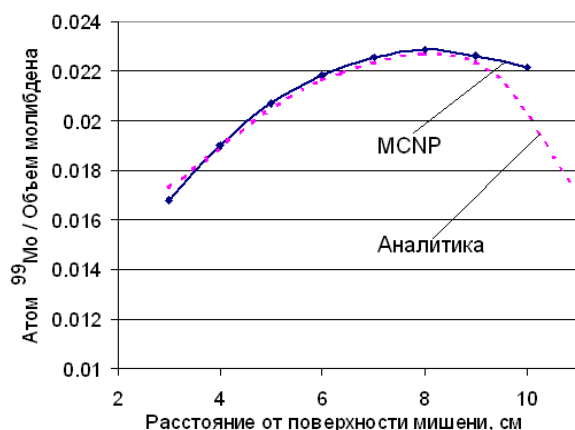


Рис. 9. Нарядок атомов ^{99}Mo в объеме облучаемого молибдена (на один первичный нейтрон) в зависимости от расстояния до поверхности мишени.

В [7] выход ^{99}Mo оценен для условий теплового реактора и составляет $y_2 = 4,6 \times 10^{-8}$ Бк/нейтр/час. По данным настоящей работы (генератор Be(d,n)) наработка ^{99}Mo происходит со скоростью $y_3 = 5,83 \times 10^{-11}$ Бк/нейтр/час.

Сравнение данных по наработке, полученных расчетом по MCNP, с полуаналитическими оценками, приведенными выше, показывает хорошее согласие зависимостей наработки ^{99}Mo от расстояния до поверхности мишени (нормировка данных «аналитика» произведена в точке, соответствующей расстоянию 4 см). Положение максимума (оптимальное положение облучаемого образца), рассчитанное в MCNP и «аналитика» практически совпадают.

Сравнение эффективности производства изотопа ^{99}Mo с использованием различных первичных излучений может быть сделано на основании следующих данных. В [3] авторы привели значение активности ^{99}Mo $y_1 = 2,25 \times 10^{-12}$ Бк/электрон/час для объединенного метода $(\gamma, n) + (n, \gamma)$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе на основе исходных данных о выходе быстрых нейтронов ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$ -генератора выполнены расчеты транспорта (замедления и поглощения) нейтронов в полиэтилене и бериллии для модели мишенного устройства, предназначенного для наработки изотопа ${}^{99}\text{Mo}$. Показано, что максимальную плотность потока в ограниченном объеме совместно с необходимой трансформацией спектра (для эффективной наработки ${}^{99}\text{Mo}$) обеспечивает замедлитель из бериллия. Замедлитель из бериллия также осуществляет размножение высокоэнергетических нейтронов по реакции $(n,2n)$. Сравнительно с предлагаемой конструкцией замедлителя в виде цилиндра из бериллия, потери нейтронов в полиэтиленовом замедлителе приблизительно в (3,5-4) раза больше, а использование графита требует увеличения размеров замедлителя, что также отрицательно сказывается на плотности потока нейтронов. Создана геометрическая модель мишенного устройства в пакете MCNP и проведены прямые расчеты образования ${}^{99}\text{Mo}$. На основании результатов расчета проведена оптимизация положения облучаемого образца природного молибдена для наработки в нем максимального количества ${}^{99}\text{Mo}$. Определены абсолютные значения наработки ${}^{99}\text{Mo}$, подтвержденные численными и аналитическими методами.

Работа выполнена при поддержке УНТЦ, грант №Р333.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. N.P. Dikiy, A.N. Dovbnaya, V.L. Uvarov Electron accelerator based soft technology for medical imaging isotopes production. Proceeding of EPAC 2002, Paris, France, p.2760-2762.
2. А.Н. Довбня, Г.Д.Пугачев, Д.Г. Пугачев, В.Л. Уваров Получение мощных фотонных пучков для наработки медицинских изотопов //Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядер.-физич. иссл. – 1997. - Т.2, вып.4,5(31,32). - С.154-156.
3. N.P. Dikiy, A.N. Dovbnaya, S.V. Maryokkhin, V.L. Uvarov On production efficiency of medical & biophysical isotopes using electron accelerator //Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядер.-физич. иссл. - 1999, №3(34). - С.91-92.
4. В.А. Цымбал, Н.Д. Масалитин, С.А. Письменецкий, В.Г. Рудичев, Е.В. Рудичев, А.Ф. Стоянов Расчет характеристик ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$ нейтронного источника при $E_d < 2,5$ МэВ //Вісник Харківського національного університету ім. В.Н. Каразіна, серія фізична “Ядра, частинки, поля”. - 2009, №859, вип.2(42). - С. 4-8.
5. Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR/CSISRS), Database version 4.09.2009, www.nndc.bnl.gov/exfor/
6. А.Д. Галанин Введение в теорию ядерных реакторов на тепловых нейтронах, 2-е изд. - М.: Энергоиздат, 1984. - 536 с.
7. А.С. Герасимов, Т.С. Зарицкая, А.П. Рудик Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах.- М.: Энергоиздат, 1989. – 575 с.

© В.О. Цимбал, М.Д. Масалітін, С.О. Письменецкий, В.Г. Рудичев, Е.В. Рудичев, О.Ф. Стоянов, 2009.