

ТЕХНИКА ЯДЕРНОГО
ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК: 62-716

НОВЫЙ СПОСОБ ОХЛАЖДЕНИЯ ТВЕРДОТЕЛЬНОЙ МИШЕНИ
ПРИ ПРОИЗВОДСТВЕ РАДИОНУКЛИДОВ ЙОД-123/124
НА ЦИКЛОТРОНЕ

©2023 г. С. С. Салодкин^{а,*}, В. В. Сохорева^а

^а *Национальный исследовательский Томский политехнический университет*

Россия, 634050, Томск, проспект Ленина, 30

** email: salodkinstepan@gmail.com*

Поступила в редакцию 22.06.2023 г.

После доработки 28.07.2023 г.

Принята к публикации 26.08.2023 г.

Исследована возможность охлаждения мишени из TeO_2 при производстве радионуклидов на основе $^{123/124}\text{I}$. Рассмотрены различные способы охлаждения, применяемые при производстве радиофармпрепаратов, их достоинства и недостатки. Предложен новый способ охлаждения, заключающийся в охлаждении передней стороны твердотельной мишени (слоя TeO_2) мелкодисперсным потоком распыленной воды. На циклотроне Томского политехнического университета проведены эксперименты по охлаждению мишени из TeO_2 , облучаемой пучком ускоренных дейтронов. При расходе воды равном 15 мл/мин и диаметре факела распыления 38 мм от мишени была отведена мощность 113 Вт при температуре поверхности мишени 120–130°C.

1. ВВЕДЕНИЕ

Радионуклиды йода используются в ядерной медицине в качестве диагностических и терапевтических агентов. Данные изотопы производят на циклотроне с использованием ускоренного пучка протонов либо дейтронов при облучении мишени из обогащенного TeO_2 .

При производстве радиоизотопов на циклотроне для обеспечения максимального выхода целевого нуклида стараются использовать максимально возможный ток пучка заряженных частиц. Энергия, теряемая заряженными частицами при торможении в веществе мишени, рассеивается в виде тепла. В результате происходит нагрев, вещество переходит в другое фазовое состояние: расплавляется, испаряется, сублимирует, и мы вынуждены ограничивать плотность тока пучка и, следовательно, интенсивность наработки радионуклида. Это

обстоятельство снижает производительность циклотрона и ухудшает экономические параметры производства радионуклидов.

Проблема сильного радиационного разогрева может быть решена, если использовать принудительное охлаждение мишени и, сохранив высокую плотность тока заряженных частиц, с помощью теплоотвода исключить возможность фазовых превращений.

Это особенно актуально для двухслойных мишеней, которые используются при производстве радиоактивного йода для медицинских целей [1]. Технология получения данных нуклидов на циклотроне включает в себя облучение мишени, состоящей из диоксида теллура, обогащенного по определенному изотопу и нанесенного на подложку из материала с высоким коэффициентом теплопроводности (Pt, Ta). В данном случае подложку будем считать задней, а слой диоксида теллура – передней стороной или передней поверхностью мишени. Из-за низкой теплопроводности TeO_2 ($30 \text{ мВт}\cdot\text{см}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$ [2]) процесс передачи тепла от вещества мишени к охлаждаемой подложке сильно затрудняется. Поэтому для увеличения производительности процесса наработки радионуклидов необходимо применять дополнительное охлаждение передней стенки мишени по направлению к пучку.

В данной работе рассматривается новый способ охлаждения передней поверхности двухслойной оксидной мишени, целью которого является увеличение коэффициента теплоотдачи между передней поверхностью мишени и потоком теплоносителя. В этом случае возможно увеличение рабочего тока пучка и производительности процесса наработки радионуклидов.

2. ТЕПЛОТВОД ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ТВЕРДОТЕЛЬНОЙ МИШЕНИ В ЦИКЛОТРОНЕ

При промышленном производстве изотопов йода в качестве мишени используется порошок TeO_2 , методом расплава нанесенный на подложку из Pt. Данная мишень позволяет выделять радионуклид ^{123}I или ^{124}I из мишени без ее разрушения методом термодиффузии в области температур фазового перехода плавления TeO_2 , обеспечивая высокий выход, высокие радионуклидную и радиохимическую чистоту. Кроме того, кислород в составе мишени способствует полному испарению йода при термическом выделении йода из мишени, что помогает разрушить теллур-йодную связь. Однако теплопроводность TeO_2 очень низкая ($30 \text{ мВт}\cdot\text{см}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$), поэтому существует необходимость дополнительного переднего охлаждения мишени.

В настоящее время классическая система охлаждения мишени при производстве радиофармпрепаратов представляет собой специальный узел, в котором происходит

облучение и охлаждение мишени. В данном устройстве на переднюю поверхность мишени подается поток газообразного гелия под давлением 2 бара и с расходом 60 л/мин, который является теплоносителем. В результате конвективной теплопередачи гелий отводит часть тепла от вещества мишени и затем попадает в теплообменник, где охлаждается до комнатной температуры и вновь подается на мишень [3]. В некоторых случаях, например на циклотроне Р7М Томского политехнического университета [4], вместо гелия используется воздух. Однако преимущества гелия заключаются в более высокой теплопроводности ($0.152 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$) [5]) по сравнению с воздухом ($0.0259 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$ [5]), а также в его инертности, что исключает химические взаимодействия с материалом мишени.

Действительно, гелий имеет достаточно высокий коэффициент теплоотдачи по сравнению с воздухом, но при этом количество отведенной тепловой мощности с использованием газового теплоносителя представляет собой крайне низкую величину в пределах 5–7 Вт [6]. Это значит, что он не способен внести серьезный вклад в процесс отвода тепла от мишени. Таким образом, для охлаждения передней стороны мишени необходимо использовать теплоноситель с гораздо более высоким коэффициентом теплоотдачи.

3. ОПИСАНИЕ СПОСОБА ОХЛАЖДЕНИЯ

Для получения коммерчески доступных препаратов на основе $^{123}\text{I}/^{124}\text{I}$ основными являются реакции на протонах ($^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$, $^{122}\text{Te}(p,2n)^{123}\text{I}$) и дейтронах ($^{124}\text{Te}(d,2n)^{124}\text{I}$, $^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$) с использованием обогащенного $^{122/124}\text{TeO}_2$ как материала мишени [7]. В качестве нового способа предложено охлаждение передней стороны мишени мелкодисперсным потоком воды, распыленной с помощью ультразвуковой колебательной системы (УЗКС). Схема устройства показана на рис. 1.

Рис. 1

Устройство УЗКС собрано по технологическим схемам, указанным в работах [8–10]. Оно состоит из преобразователя, согласующего элемента и рабочего излучающего инструмента. В преобразователе (активном элементе) колебательной системы происходит преобразование энергии электрических колебаний в энергию упругих колебаний ультразвуковой частоты и создается знакопеременная механическая сила.

Согласующий элемент системы (пассивный концентратор) осуществляет трансформацию скоростей и обеспечивает согласование внешней нагрузки и активного внутреннего элемента.

Рабочий инструмент создает ультразвуковое поле в обрабатываемом объекте или непосредственно воздействует на него.

Распыление жидкости осуществляется следующим образом. Электрические колебания от электронного генератора подаются к пьезоэлектрическому преобразователю. В активной части преобразователя возбуждается стоячая продольная волна. При истечении из центрального канала жидкость распределяется по поверхности излучения в направлении от центрального канала к краям рабочего инструмента под действием разряжения, вызванного колебаниями поверхности излучения с ультразвуковой частотой [8]. Диаметр факела распыления подбирается равным диаметру мишени, толщина слоя воды на поверхности мишени подбирается исходя из “приемлемых” потерь энергии пучка заряженных частиц при прохождении через слой воды. Диаметр капель распыленной жидкости зависит от частоты колебаний УЗКС и для 22 кГц составляет 80–100 мкм [11].

Сущность предложенного способа заключается в следующем. При облучении твердотельной мишени пучком заряженных частиц охлаждение передней стороны осуществляется мелкодисперсным потоком воды с помощью устройства распыления жидкости (рис. 2). Производительность распыления подбирается таким образом, чтобы температура передней поверхности была выше температуры насыщения распыляемой жидкости, но ниже температуры, при которой режим кипения переходит в пленочный. В этом случае коэффициент теплоотдачи существенно увеличивается за счет процессов испарения.

Рис. 2

4. ОСОБЕННОСТИ ОХЛАЖДЕНИЯ МИШЕНИ УКАЗАННЫМ СПОСОБОМ

Основным недостатком газового теплоносителя, охлаждающего переднюю поверхность мишени, является низкий коэффициент теплоотдачи. В этой связи распыляемая вода имеет глобальное преимущество. В табл. 1 приведено расчетное сравнение различных способов охлаждения мишени, применимых на практике.

Табл. 1

Режимы охлаждения подбираются индивидуально в зависимости от размеров мишени, начальной энергии пучка заряженных частиц и толщины слоя воды, которую мы можем подать на мишень.

Основная идея разработанного способа заключается в том, что производительность распыления подбирается таким образом, чтобы вода, попадая на разогретую поверхность мишени, испарялась, охлаждая мишень за счет энергии фазового перехода. В этой связи важно подобрать такой поток распыляемой воды, чтобы режим кипения постоянно поддерживался пузырьковым и не переходил в пленочный либо в обычное конвективное омывание мишени водой. Данный режим кипения зависит от температуры на поверхности мишени и может регулироваться увеличением либо уменьшением производительности распыления.

При прохождении пучка высокоэнергетических частиц через слой воды происходит ионизация атомов вещества и энергия пучка снижается. В этом случае также важно предусмотреть возможные потери энергии, если на поверхности мишени по каким-либо причинам будет поддерживаться слой воды определенной толщины. Если энергия пучка при прохождении слоя воды уменьшится до слишком низких энергий (менее 10 МэВ), выход конечного продукта также уменьшится, либо целевая ядерная реакция вообще не будет происходить.

Еще один момент, связанный с потерями энергии пучка в слое воды на мишени, – это нагрев воды. Энергия пучка, рассеиваясь в веществе хладагента, нагревает ее, и в случае большого количества воды возможно ее полное испарение. В результате, пучок испарит всю воду, и передняя сторона мишени останется без охлаждения.

Оптимальным ускорителем, на котором может быть реализовано данное устройство, является медицинский циклотрон с энергией протонов 18 МэВ и более. В этом случае возможно подавать на мишень достаточно большой слой воды (0.1–0.3 мм), которая снизит энергию пучка до 15–16 МэВ, но при этом обеспечит достаточное охлаждение мишени и высокий интегральный выход продукта реакции.

5. ИССЛЕДОВАНИЕ РАБОТОСПОСОБНОСТИ ПРЕДЛАГАЕМОГО СПОСОБА ОХЛАЖДЕНИЯ

Для апробации разработанного способа был проведен эксперимент по облучению мишени из природного TeO_2 пучком дейтронов с энергией 13.6 МэВ на циклотроне Р7М ТПУ. При выполнении эксперимента решались следующие задачи:

- исследование возможности охлаждения передней стороны двухслойной мишени с помощью мелкодисперсного распыления воды с расходом 15 мл/мин;
- измерение температуры платиновой подложки оксидной мишени в процессе облучения и охлаждения разными токами пучка;
- визуальное определение целостности слоя TeO_2 после серии облучений различными токами.

В качестве измерителя температуры использовался прибор ТРМ200, состоящий из термопары (хромель-алюмель) и двухканального измерителя. Пределы допускаемых отклонений термоэДС чувствительных элементов датчика для термопары хромель-алюмель, согласно паспорту производителя [12], составляет $\pm 0.004t$ °С.

Тепловая мощность, осаждаемая на мишени пучком дейтронов, не измеряется напрямую, а рассчитывается как произведение значений энергии в МэВ и тока пучка в мкА. Поскольку

энергия дейтронов для данного циклотрона изначально установлена на уровне 13.6 МэВ, единственным прибором, с помощью которого можно косвенно измерить тепловую мощность, является микроамперметр, измеряющий ток пучка. Погрешность прибора составляет ± 0.1 мкА.

Рис. 3

Мишень представляет собой слой TeO_2 , наплавленный на подложку из Pt (рис. 3). Данная мишень является стандартной для использования в производственном процессе получения ^{123}I и имеет следующие параметры:

- диаметр слоя TeO_2 – 20 мм,
- диаметр Pt подложки – 35 мм,
- толщина слоя TeO_2 – 0.083 мм,
- толщина Pt подложки – 0.29 мм.

При выходе из циклотрона пучок дейтронов с начальной энергией 13.6 МэВ попадает поочередно на Be–Al-фольгу (отделяет вакуум циклотрона от атмосферы), где теряет 0.5 МэВ, проходит слой воздуха толщиной 10 мм, с общими потерями 0.1 МэВ и попадает на слой воды на поверхности мишени (водяное переднее охлаждение), где теряет 1.7 МэВ. Таким образом, поверхность слоя TeO_2 облучается пучком с энергией 11.3 МэВ. Потери энергии рассчитывались с использованием программы SRIM [13].

Охлаждение мишени осуществлялось мелкодисперсным потоком распыленной воды, направленным на переднюю поверхность мишени (по отношению к пучку). Вода распылялась с помощью ультразвуковой колебательной системы с частотой 22 кГц.

5.1. Облучение мишени TeO_2 током 10 мкА

Эксперимент проводился с использованием пучка дейтронов. Время облучения составляло 5 мин, максимальная мощность пучка 113 Вт. Охлаждалась мишень только со стороны слоя TeO_2 , со следующими параметрами облучения и охлаждения:

- тип ускоренных частиц – d ,
- энергия – 11.3 МэВ,
- ток – 10 ± 0.1 мкА,
- мощность пучка – 113 ± 1 Вт,
- тепловыделение в слое TeO_2 – 18.5 ± 0.2 Вт,
- тепловыделение в слое Pt – 94.5 ± 0.9 Вт,
- расход воды – 0.25 мл/с,
- диаметр факела распыления – 38 мм,
- толщина слоя воды на поверхности TeO_2 – 0.2 мм.

Рис. 4

Результаты измерений приведены в табл. 2 и на рис. 4. После установления теплового равновесия была проверена мишень: слой TeO_2 без внешних изменений, что говорит о работоспособности предложенного способа и принципиальной возможности его использования в производственной практике.

Табл. 2

5.2. Облучение мишени TeO_2 током 15 мкА

Рис. 5

Во втором эксперименте было решено увеличить ток пучка до 15 мкА, таким образом тепловая мощность пучка составила 169.5 ± 1 Вт, тепловыделение в слое TeO_2 – 31 Вт, а в слое Pt – 138.5 ± 0.3 Вт. Параметры охлаждения остались без изменений. В табл. 3 и на рис. 5 представлены результаты измерений.

Табл. 3

В данном эксперименте тепловое равновесие не установилось. Материал мишени (слой TeO_2) частично разрушился, на поверхности появились ярко выраженные “горячие точки” – места локального перегрева мишенного материала.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В эксперименте проводилось измерение температуры Pt-подложки двухслойной (TeO_2 –Pt) мишени при облучении пучком дейтронов с энергией 13.6 МэВ и токами 10 мкА и 15 мкА. Охлаждение проводилось мелкодисперсным потоком воды, распыляемой с помощью УЗКС с частотой 22 кГц на переднюю поверхность мишени со стороны падающего пучка. Расход охлаждающей жидкости регулировался насосом и составлял 15 мл/мин.

Эксперименты доказали работоспособность системы с одним лишь передним охлаждением при общей тепловой мощности пучка 113 Вт. При низком расходе охлаждающей жидкости (15 мл/мин) и тепловой мощности 113 Вт температура мишени была в районе 120–130 °С. Расход воды необходимо поддерживать на минимально возможном значении в целях уменьшения потерь энергии пучка заряженных частиц. Для увеличения возможности отвода большой мощности (более 500 Вт) необходимо использовать совместное охлаждение передней и задней сторон мишени.

Разработанный способ позволяет увеличить рабочий ток пучка заряженных частиц при производстве радионуклидов за счет более эффективного переднего охлаждения мишени по сравнению с аналогами [3, 4]. Увеличение рабочего тока пучка позволит увеличить конечный выход радионуклида, повысить производительность технологии, т.е. активность производимого изотопа в единицу времени, и снизить затраты машинного времени циклотрона, что существенно снижает себестоимость производства. Однако для более полного понимания возможностей использования предложенной системы необходимо

разработать тепловую модель процессов охлаждения мишени при облучении пучком заряженных частиц.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена в рамках программы Приоритет-2030-НИП/ЭБ-051-375-2023.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. International Atomic Energy Agency. Technical reports series № 432. Vienna. 2004.
2. *Comor J.J., Stevanovic Z., Rajcevic M. and Kosutic D.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 2004. V 521. P. 161. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2003.11.147>
3. Nirta Solid Compact Model TS06. Operating Manual. / ELEX Commerce. Belgrade, Serbia. 2010.
4. Структурная схема циклотронной установки Р7М. Техническая документация. Циклотрон Р7М с регулируемой энергией ускоряемых ионов. Лаборатория получения радиоактивных веществ НИИ ЯФ при ТПУ, 2010.
5. *Варгафтик Н.Б.* Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. Москва: Наука, 1972.
6. *Салодкин С.С.* Патент RU 2 777 655 С1.
7. *Салодкин С.С., Головков В.М.* // Известия вузов. Физика. 2019. Т. 65. № 12. С.171. <https://doi.org/10.17223/00213411/62/12/171>
8. *Хмелев В.Н.* Ультразвук. Распыление жидкостей. Бийск: Общероссийское литературное сообщество, 2017.
9. *Хмелев В.Н., Шалунов А.В., Шалунова А.В.* Ультразвуковое распыление жидкостей. Бийск: Изд-во Алт. гос. техн. ун-та, 2010.
10. *Хмелев В.Н., Хмелев С.С., Цыганок С.Н., Левин С.В.* Источники ультразвукового воздействия. Особенности построения и конструкции. Бийск: Изд-во Алт. гос. техн. ун-та, 2013.
11. *Хмелев В.Н., Шалунов А.В., Шалунова А.В., Гольх Р.Н., Генне Д.В.* // Ползуновский вестник. 2012. №3/2.
12. Преобразователи термоэлектрические. Руководство по эксплуатации. Овен ДТП. ПО ОВЕН. https://owen.by/images/docments/owen/termopary/xxx1/re_dtp__1847.pdf
13. *Ziegler J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 2010. V 268. P. 1818. <https://doi.org/10.1016/J.NIMB.2010.02.091>

Таблица 1. Сравнение способов охлаждения передней поверхности мишени [6]

Способ охлаждения	Коэффициент теплоотдачи, Вт×м ⁻¹ ·К ⁻¹	Тепловая мощность, отводимая от мишени передним охлаждением, Вт	Комментарии
Охлаждение воздухом	169.9	6.45	Коэффициент теплоотдачи увеличивается за счет процессов кипения воды. Тепловая мощность, отводимая от мишени, увеличивается за счет увеличенного коэффициента теплоотдачи между передней поверхностью мишени и распыленной водой.
Охлаждение гелием	208.6	7.92	
Охлаждение мелкодисперсным потоком воды	32·10 ³	359.2	

Таблица 2. Результаты измерений при облучении мишени TeO₂ током 10 мкА

Продолжительность облучения, с	Температура, °С
0	24 ± 0.096
60	105 ± 0.42
120	120 ± 0.48
180	130 ± 0.52
240	133 ± 0.53
300	129 ± 0.51

Таблица 3. Результаты измерений при облучении мишени TeO_2 током 15 мкА

Продолжительность облучения, с	Температура, °C
0	27 ± 0.1
60	200 ± 0.8
120	250 ± 1.0
180	277 ± 1.1

СПИСОК РИСУНКОВ

- Рис. 1.** Схема УЗКС: 1 – концентратор, 2 – пьезоэлементы, 3 – отражающая накладка, 4 – стягивающая шпилька, 5 – изолирующая втулка, 6 – поясок крепления, 7 – рабочий инструмент, 8 – канал подачи воды.
- Рис. 2.** Схема экспериментальной установки: 1 – двухслойная мишень, 2 – выходное окно канала циклотрона, 3 – канал циклотрона, 4 – ультразвуковой генератор, 5 – насос подачи воды, 6 – бак с дистиллированной водой, 7 – устройство распыления, 8 – поток мелкодисперсно распыленной жидкости.
- Рис. 3.** Вид и размеры двухслойной мишени. Толщина мишени может варьироваться в зависимости от производственной необходимости.
- Рис. 4.** Изменение температуры во времени при тепловой мощности 116.9 Вт и расходе воды 15 мл/мин.
- Рис. 5.** Изменение температуры во времени при тепловой мощности 175.3 Вт и расходе воды 15 мл/мин.

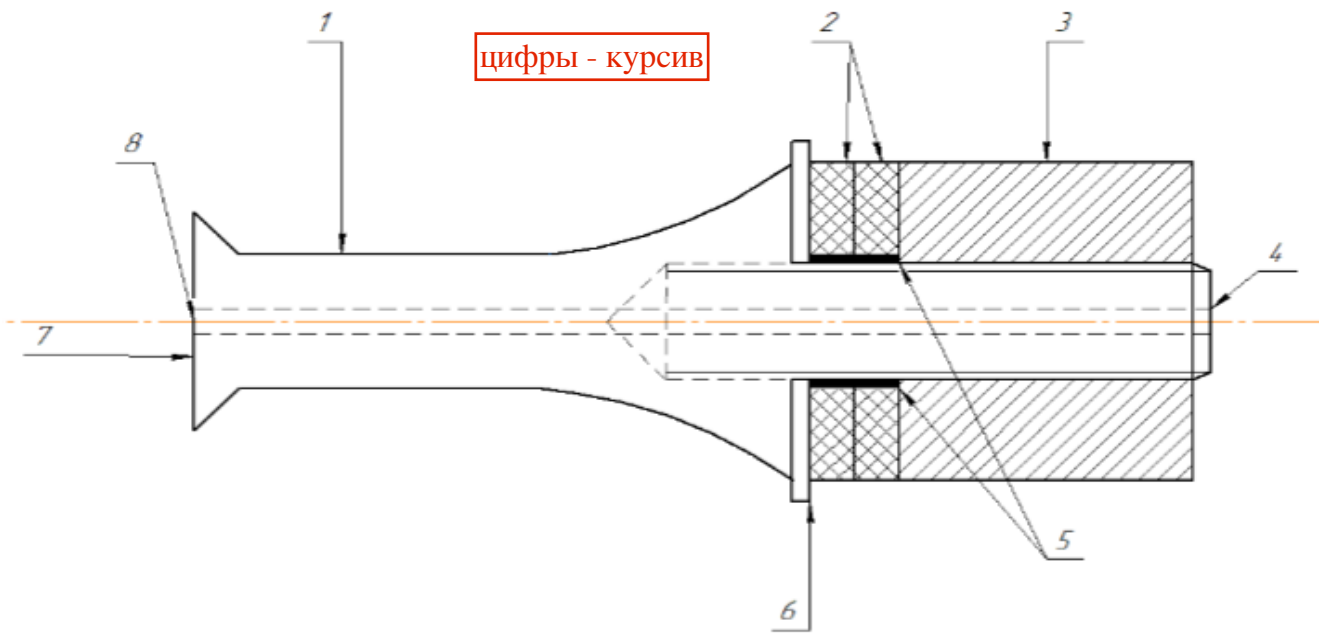


Рис. 1.

цифры - курсив

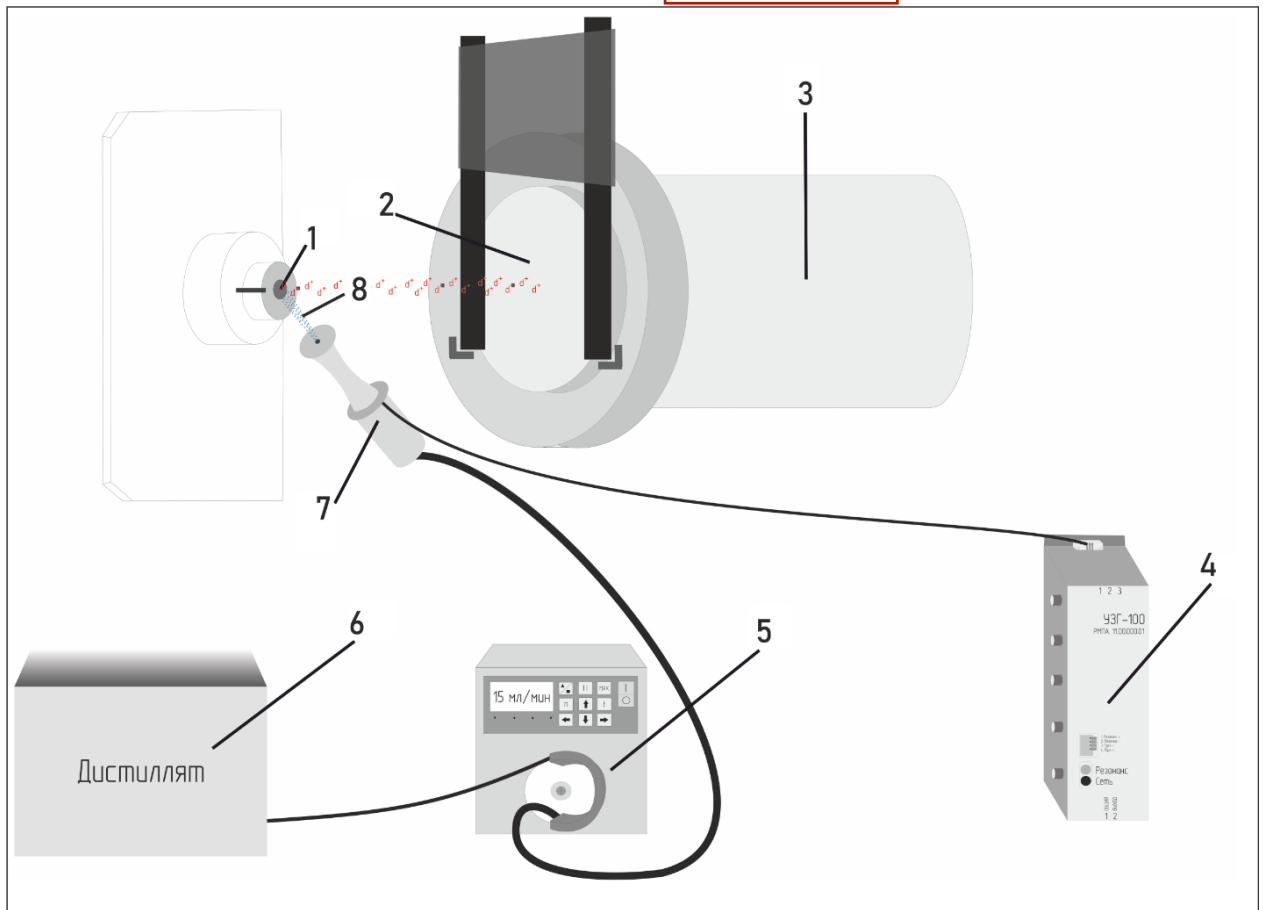


Рис. 2

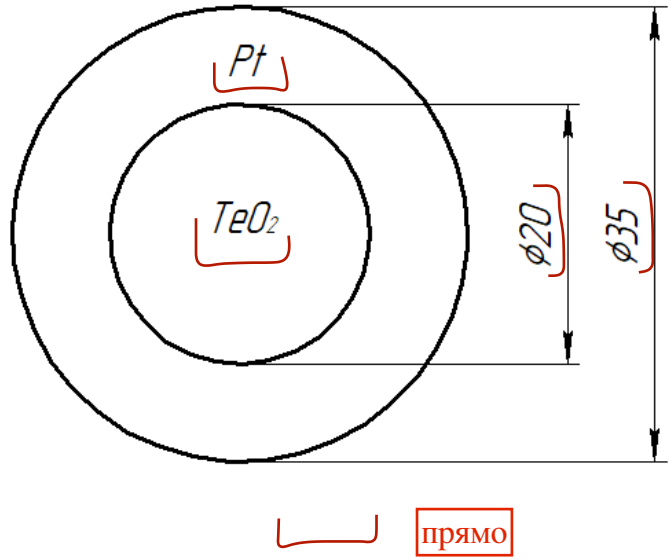


Рис. 3.

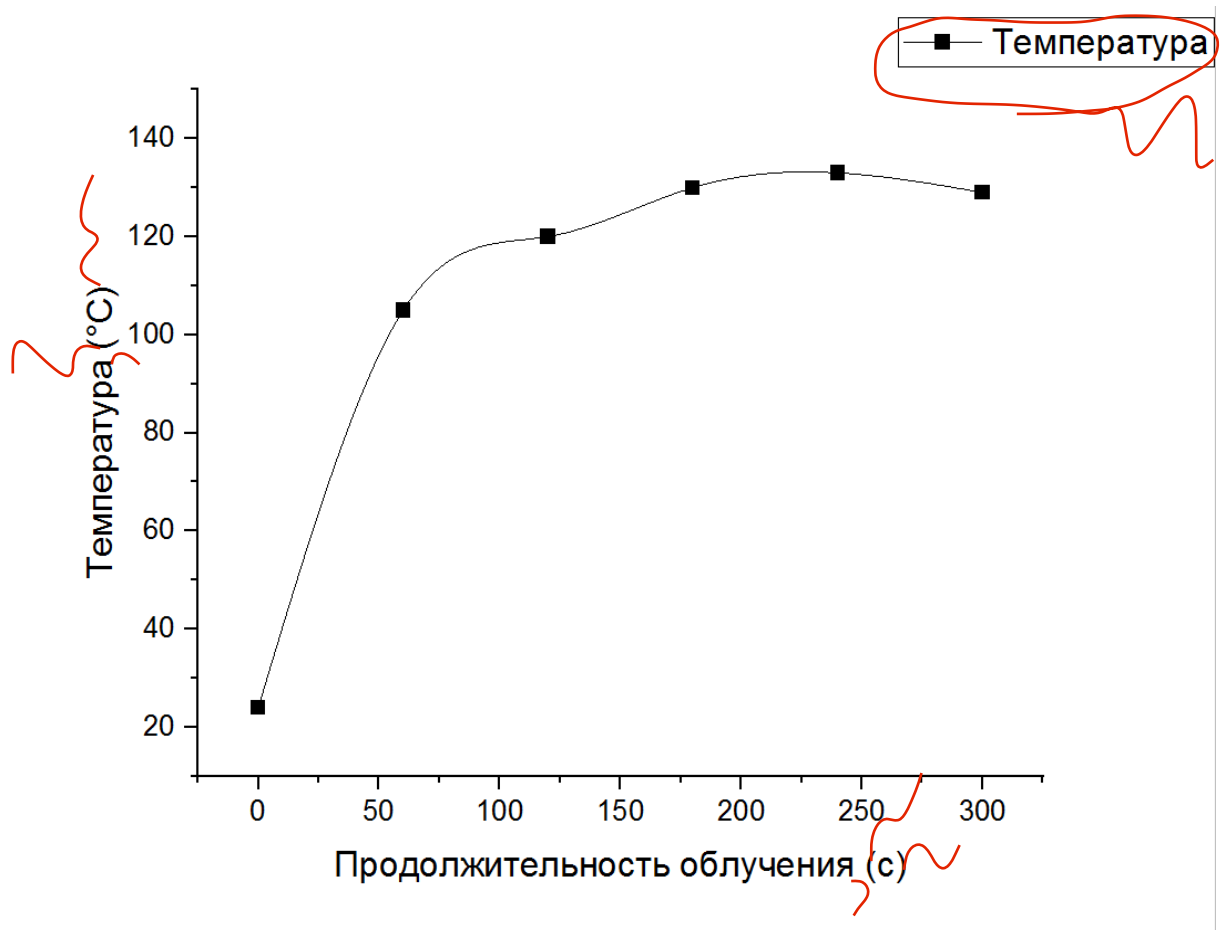


Рис. 4.

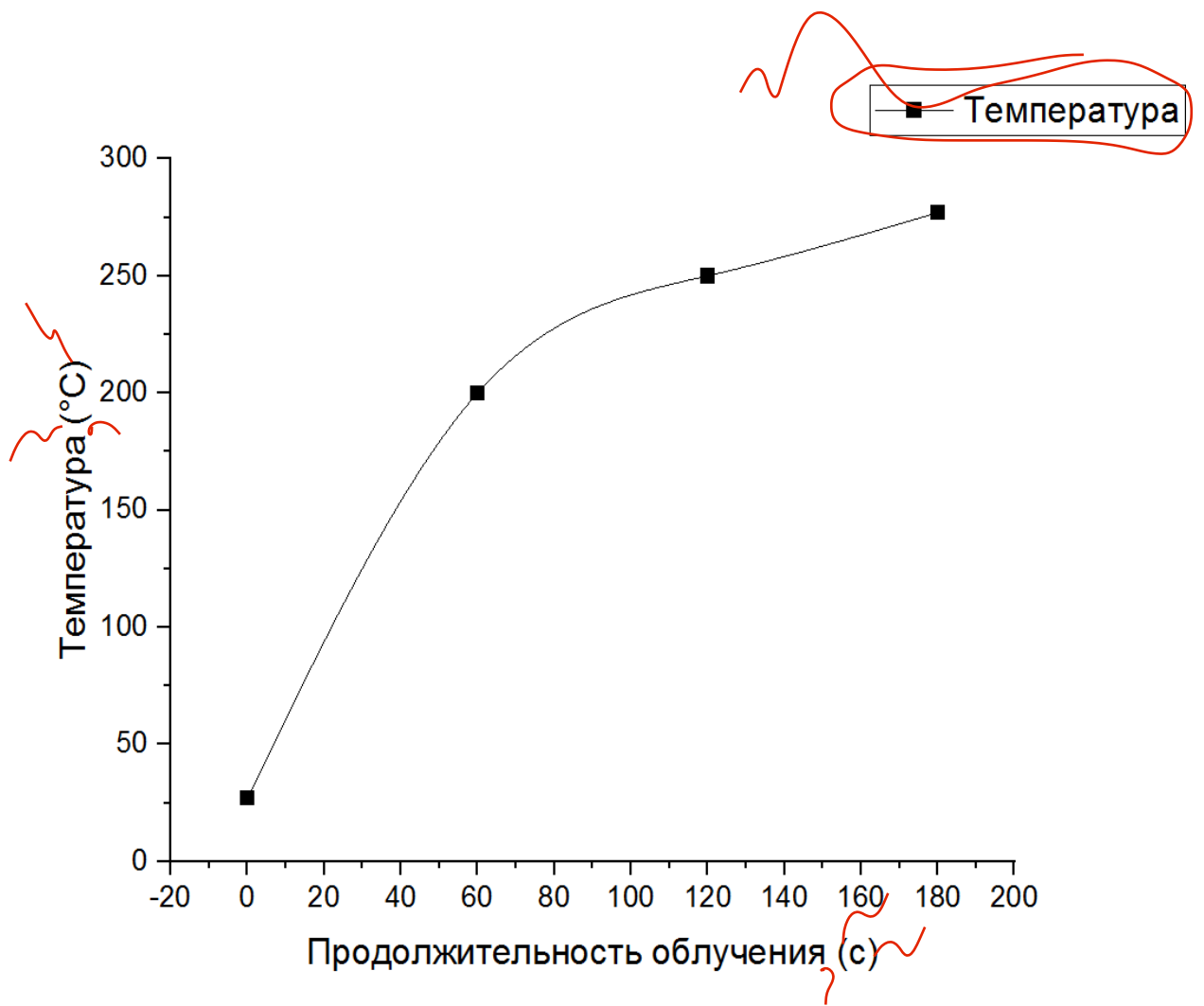


Рис. 5.

Для связи с авторами:

Салодкин Степан Сергеевич

Е-mail: salodkinstepan@gmail.com

Тел.: 8-901-611-70-17 (моб.)

Сохорева Валентина Викторовна

Е-mail: sokhoreva@tpu.ru

Для переводчика:

New method for solid target cooling during iodine-123/124 production at cyclotron

Аннотация:

A method for cooling the front side of a solid target during cyclotron iodine isotope production was developed. The cooling is performed in the form of a fine-dispersed water flow directed to the front side of the target (toward the beam). At the cyclotron of Tomsk Polytechnic University, was conducted an experiment to irradiate a TeO₂ target with a 13.6 MeV deuteron beam and cooling using the developed method. As a result, at a beam thermal power of 116.9 W and a water flow rate of 15 ml/min, the surface temperature of the target was maintained within 120-130 °C. The developed method makes it possible to increase the beam current and reduce the production cost of radiopharmaceuticals.