

ОЦЕНКА УВЕЛИЧЕНИЯ ПРОИЗВОДСТВА ^{131}I ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ТЕЛЛУРОВЫХ МИШЕНЕЙ УСОВЕРШЕНСТВОВАННОЙ КОНСТРУКЦИИ НА РЕАКТОРЕ ВВР-ц

О.Ю. Кочнов, В.В. Колесов, Р.В. Фомин, Г.М. Жердев

*Обнинский институт атомной энергетики НИЯУ МИФИ
249040, Обнинск, Калужской обл., Студгородок, 1*



Проблема увеличения производства радионуклида ^{131}I в медицинских целях по-прежнему актуальна. Основным потребителем этого продукта в Европейском регионе РФ является МРНЦ (Обнинск). Собственное производство в Обнинском филиале ФГУП «Институт физической химии им. Карпова» является недостаточным и требует дополнительных поставок ^{131}I из НИИАР (Димитровград). Но поскольку период полураспада ^{131}I составляет всего восемь дней, его транспортировка на большие расстояния становится нецелесообразной. Поэтому увеличение производства этого радионуклида в Обнинском филиале Института физической химии может принести значительный экономический эффект.

Разработана новая конструкция мишени для производства ^{131}I . Однако до сих пор не было сделано сравнительных оценок эффективности стандартной и модифицированной мишеней.

Выполнена оценка производства ^{131}I для обеих мишеней при облучении их в реакторе ВВР-ц. Показано, что новая мишень обеспечивает значительное (примерно в три раза) увеличение производства.

Исследована замена алюминиевого сплава оболочки мишени на оболочку из нержавеющей стали и обнаружено 20%-ное снижение выхода ^{131}I . Сравнение рассчитанного выхода ^{131}I с реально извлекаемым показывает, что суммарный выход ^{131}I может быть существенно увеличен.

Ключевые слова: реактор ВВР-ц, теллуровая мишень, наработка ^{131}I .

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время расширение производства радионуклида медицинского назначения ^{131}I по-прежнему является актуальным. ^{131}I ($T_{1/2} = 8.02$ сут, $E_{\beta} = 0.607$ МэВ (вероятность – 89.9%), $E_{\gamma} = 364$ кэВ (вероятность – 82%)) используется в качестве радиоактивной метки для диагностики широкого спектра онкологических заболеваний (щитовидная железа, печень, сердце и т.д.), а также для терапии некоторых видов опухолей. Развитие производства йодных радиофармпрепаратов представлено на рис. 1. Основным потребителем продукции в европейском регионе является

© О.Ю. Кочнов, В.В. Колесов, Р.В. Фомин, Г.М. Жердев, 2014

ся онкологический центр МРНЦ РАМН (г. Обнинск). Несмотря на рост производства в НИФХИ им. Л.Я. Карпова йодных препаратов, спрос на них превышает предложение и требуются дополнительные поставки ^{131}I из ГНЦ РФ-НИИАР. С другой стороны, в силу того, что период полураспада ^{131}I составляет всего восемь дней, перевозка его на дальние расстояния становится нерентабельной. Поэтому увеличение наработки этого изотопа в филиале НИФХИ им. Л.Я. Карпова (г. Обнинск) может принести заметный экономический эффект.

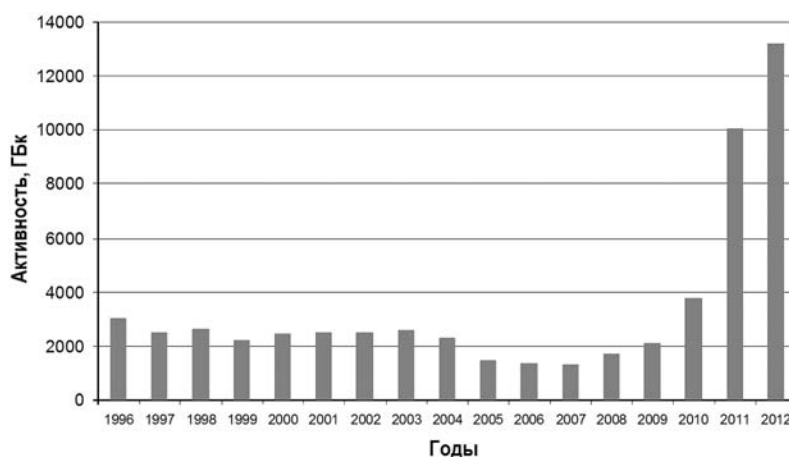


Рис. 1. Производство радиофармпрепаратов на основе ^{131}I в НИФХИ им. Л.Я. Карпова

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Увеличение производства ^{131}I может быть обеспечено несколькими и способами:

- расширением общего количества облучаемых мишеней при увеличении числа экспериментальных каналов и облучательных устройств в активной зоне реактора ВВР-ц;
- облучением мишеней с последующим возвратом на переработку из других исследовательских реакторов (например, ИВВ-2М г. Заречный) и атомных станций (например, ЛАЭС);
- установкой мишеней в повышенном нейтронном потоке (например, в нейтронных ловушках) и т.д.

Все эти способы используются, однако каждый из них имеет преимущества и недостатки. Основное внимание при этом может уделяться модернизации конструкции мишеней, располагающихся в технологическом канале в активной зоне реактора.

В предлагаемой работе с помощью расчетных моделей предполагалось решить вопрос о целесообразности модернизации мишеней для наработки ^{131}I . В результате для предприятия-производителя радионуклидов станет понятен путь наиболее эффективного расширения производства.

Сформулируем основные требования к мишени:

- мишень должна помещаться в перфорированный блок-контейнер с внутренним диаметром 54 мм;
- диаметр мишени ограничен 30-миллиметровой технологической установкой извлечения ^{131}I ;
- мишень состоит из отдельных таблеток, находящихся в герметичных кварцевых ампулах и выдерживающих режимы облучения. Размер технологических выступающих «хвостовиков» должен быть минимальным.

В начале производства мишень представляла собой набор кварцевых ампул, по-

мещенный в перфорированный блок-контейнер. Мишень устанавливалась в глухой вертикальный экспериментальный канал с естественным охлаждением на периферии активной зоны. Использование таких мишеней (рис. 2) не позволяло существенно увеличить производство ^{131}I , поэтому в 2012 г. была предложена новая усовершенствованная мишень с увеличенной загрузкой исходного сырья ^{130}Te , что позволило увеличить производство более чем в шесть раз.

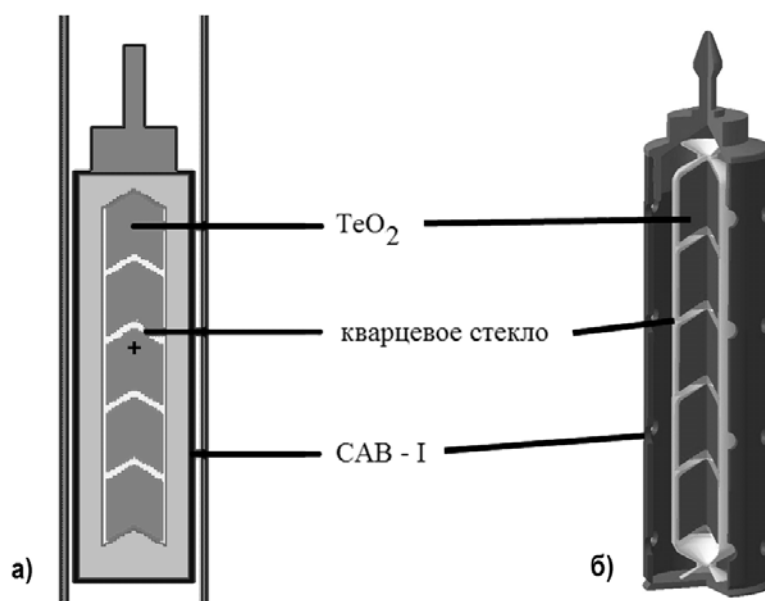


Рис. 2. а). Модель первоначальной мишени для наработки ^{131}I , используемая в расчетах. б). Первоначальная мишень для наработки ^{131}I

Однако и этого оказалось недостаточно, поэтому в работе оценивалась возможность замены в модернизированной мишени материала оболочки. Переход на новую оболочку позволит увеличить температуру в печи для выделения ^{131}I , что приведет к существенно большему выходу йода (более чем в два раза) без плавления оболочки. Увеличивается также навеска исходного материала за счет исключения кварцевого стекла.

На рисунке 3 приводится модель модернизированной мишени для наработки ^{131}I .

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

В работе [1] была представлена модель активной зоны реактора ВВР-ц, позволяющая, в частности, проводить расчетные исследования по улучшению наработки радионуклидов в технологических каналах. На основании этой модели можно проводить сравнение различных мишеней с точки зрения их эффективности для наработки ^{131}I с использованием программ MCNP [2] и VisualBurnOut [3].

Нами были проведены расчеты выхода ^{131}I в первоначальной (рис. 2 а) и модернизированной (рис. 3 а) мишенях, помещаемых в технологические каналы 1-1 и 1-4 реактора ВВР-ц в процессе кампании.

Кампания реактора ВВР-ц составляет 100 часов в неделю с последующей остановкой для расхолаживания, перегрузки топлива, мишеней и других технологических операций. Обычно мишень находится в канале реактора в течение двух кампаний. Таким образом, мишень 100 часов облучается в канале реактора при работе его на номинальной мощности 10 МВт, перерыв в работе реактора (выдержка мишени в экспериментальном канале без потока нейтронов) составляет 68 часов и затем еще

100 часов мишень снова облучается в канале реактора при его работе на номинальной мощности. Сразу после этого мишень отправляется на переработку.

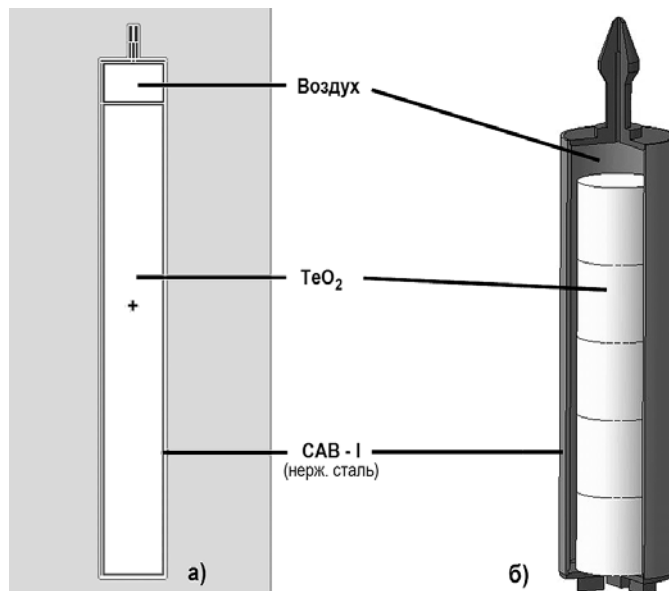


Рис. 3. а). Модель модернизированной мишени для наработки ^{131}I , используемая в расчетах.
б). Модернизированная мишень для наработки ^{131}I

Основная цепочка реакций, приводящих к образованию ^{131}I , показана на рис. 4.

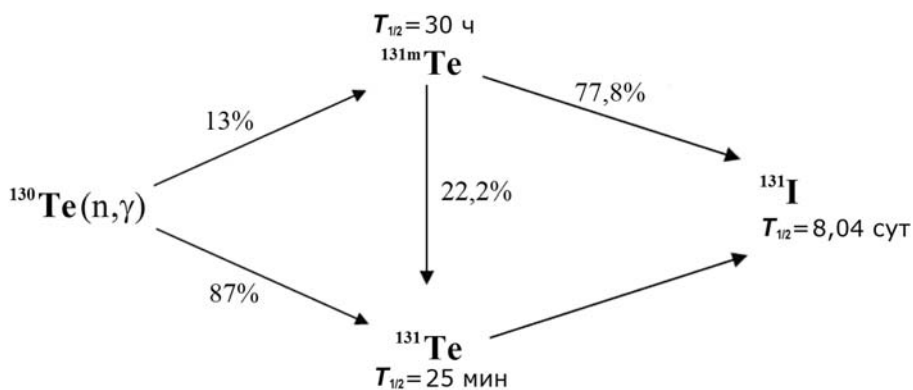


Рис. 4. Основная цепочка реакций, приводящих к образованию ^{131}I

Прежде чем перейти к оценкам выработанной активности в первоначальной и модернизированной мишенях сравним имеющиеся ядерные данные, которые могут быть использованы при проведении расчетов.

В настоящее время существует достаточно большое количество оцененных нейтронных данных, которые могут быть использованы для расчетов выхода ^{131}I при выдержке двуокси теллура в потоке нейтронов. Будем использовать оценку, приведенную в библиотеке JENDL-3.2 (1990 г.), и более новую оценку ENDF/B-VII.1 (2011 г.).

Одногрупповые константы, полученные с использованием этих данных для реакции (n, γ) на ^{130}Te , которая и определяет скорость накопления ^{131}I , различаются почти на 30% (табл. 1).

Таблица 1

Сравнение одногрупповых констант, рассчитанных по различным библиотекам

Реакция	¹³⁰ Te		¹³¹ I	
	JENDL-3.2	ENDF/B-VII.1	JENDL-3.2	ENDF/B-VII.1
(n, γ), барн	0.085	0.060	24.36	24.63

Рассмотрим далее, к каким различиям в ядерных концентрациях ¹³¹I это может привести. В работе [4] приводятся ядерные концентрации ¹³¹I для различных времен выдержки и значений параметра жесткости спектра (отношение надтеплого потока нейтронов к тепловому). Поскольку зависимость ядерных концентраций ¹³¹I практически линейно зависит от параметра жесткости спектра (табл. 42.1 в [4], $N(^{131}\text{I}) = 0.64 + \gamma$, где γ – параметр жесткости спектра), то мы экстраполировали приведенные в табл. 42.1 значения к параметру жесткости спектра, равному 0.6, который соответствует реактору ВВР-ц. В таблице 2 приведены результаты расчетов по двум библиотекам в сравнении с результатами из работы [4] для плотности потока нейтронов, равной $10^{14} \text{ c}^{-1} \text{ см}^{-2}$.

Таблица 2

Ядерные концентрации ¹³¹I (1/см³) для различных времен выдержки двуокиси теллура

Дни	VisualBurnOut JENDL-3.2	VisualBurnOut ENDF/B-VII.1	Результаты из [4]
3	$1.24 \cdot 10^{16}$	$0.88 \cdot 10^{16}$	$1.25 \cdot 10^{16}$
6	$2.21 \cdot 10^{16}$	$1.57 \cdot 10^{16}$	$2.24 \cdot 10^{16}$
9	$2.96 \cdot 10^{16}$	$2.10 \cdot 10^{16}$	$3.02 \cdot 10^{16}$
12	$3.54 \cdot 10^{16}$	$2.50 \cdot 10^{16}$	$3.62 \cdot 10^{16}$

Таким образом, наблюдается значительное расхождение в концентрациях ¹³¹I, получаемых по различным библиотекам. При этом отмечается хорошее совпадение результатов, полученных по библиотеке JENDL-3.2 и приведенных в работе [4]. Однако следует заметить, что результаты, приведенные в [4], получены давно и без ссылки на используемые библиотеки.

Перейдем теперь непосредственно к расчетам наработки ¹³¹I в экспериментальных каналах реактора ВВР-ц для реальной кампании. Полученные по программе VisualBurnOut результаты с использованием файлов из библиотеки JENDL-3.2 сравнивались (для случая оболочки из сплава САВ-1) с результатами, полученными по программе ORIGEN-S (комплекс СКАЛА, файлы из библиотеки РОСФОНД) [5]. Главным отличием этих программ является процедура подготовки одногрупповых констант. В таблице 3 приводятся результаты расчетов для экспериментального канала 4-1 реактора ВВР-ц для алюминиевого сплава САВ-1 в качестве оболочки модернизированной мишени (программы VisualBurnOut и ORIGEN-S), а в табл. 4 – для оболочки из стали 12X18H10T (программа VisualBurnOut).

Значительные различия (порядка 35%, см. табл. 3) в расчетах по двум программам объясняются, возможно, резонансной структурой теллура, например, изотоп ¹²³Te имеет сильный резонанс при энергии 2.33 эВ (50000 барн). Несмотря на то, что его доля в естественной смеси теллура составляет всего около 1%, это приводит к сильному провалу в нейтронном потоке (рис. 5), который сказывается на подготовке одногрупповых констант. Недостаточный учет этого провала приводит к завышению сечений, что и наблюдается реально. Сечение реакции (n, γ) на ¹³⁰Te с использованием библиотеки ENDF/B-VII.1 при таком подходе составило 0.1 барн (против 0.06 барн в наших расчетах по

ENDF/B-VII.1 и 0.085 барн по библиотеке JENDL-3.2). Одногрупповые константы для программы ORIGEN-S были получены с помощью свертки плотности потока нейтронов по 299-групповому спектру, полученному в программе MCNP, что, вероятно, не обеспечило полный учет блокировок.

Таблица 3

Сравнение результатов расчета накопления ^{131}I в реакторе ВВР-ц, полученных по программам VisualBurnOut (файлы из библиотеки JENDL-3.2) и ORIGEN-S для случая оболочки из сплава САВ-1

	VisualBurnOut	ORIGEN-S
Концентрация ^{131}I ($1/\text{см}^3$)	$2.56 \cdot 10^{16}$	$3.37 \cdot 10^{16}$
Активность (Ки)	191.4	252.0

Таблица 4

Результаты расчета накопления ^{131}I в реакторе ВВР-ц, полученные по программе VisualBurnOut (файлы из библиотеки JENDL-3.2) для случая оболочки из стали 12X18H10T

	VisualBurnOut
Концентрация ^{131}I ($1/\text{см}^3$)	$2.29 \cdot 10^{16}$
Активность (Ки)	171.1

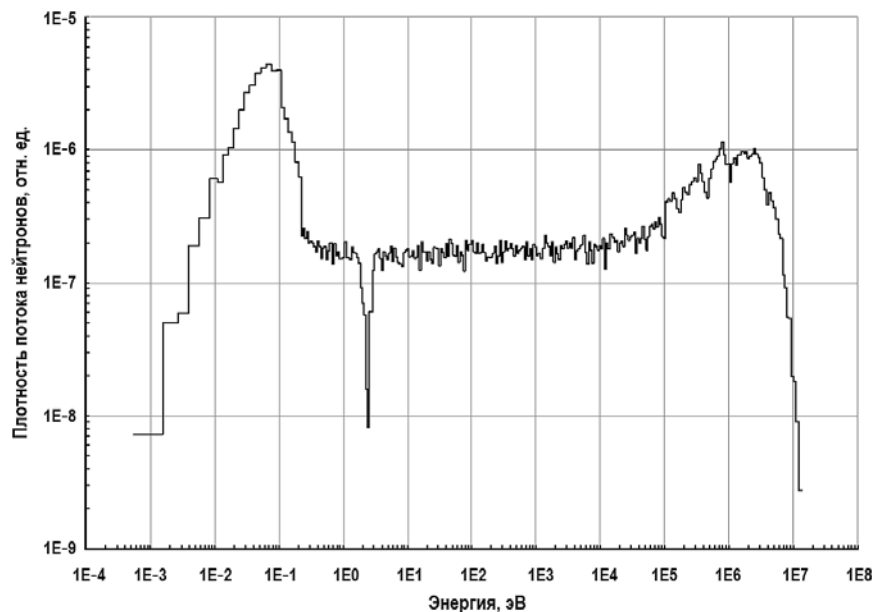


Рис. 5. Спектр нейтронов двуокси теллура (в относительных единицах на один нейтрон деления)

Для сравнения (табл. 5) нами были проведены расчеты наработки йода в первоначальной мишени, использовавшейся до недавнего времени. Расчеты проводились в каналах 1-4 и 1-1. В расчетах учитывалось, что модернизированная мишень состояла из пяти блоков.

Эксперименты, проведенные в 2013 г. с модернизированной мишенью, показали относительное увеличение выхода ^{131}I более чем в два раза. Расчетные исследования дают более чем трехкратное увеличение выхода. Полное извлечение суммарной удельной активности при переработке мишеней не достигается из-за технологических сложностей. Этим и объясняется тот факт, что расчеты показывают большее увеличение выхода для модернизированной мишени. Таким образом, необходимо

проводить дальнейшие исследования по конфигурации и геометрии мишени, а также совершенствование оборудования для максимально возможного извлечения радионуклида ^{131}I .

Таблица 5

Результаты расчета накопления ^{131}I в реакторе ВВР-ц, полученные по программе VisualBurnOut (файлы из библиотеки JENDL-3.2) для первоначальной и модернизированной мишени и оболочки из САВ-1

№ блока снизу вверх	Первоначальная мишень							
	Канал 4-1				Канал 1-1			
	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (расчет)	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (эксперимент)	Концентрация ^{131}I , 10^{16} 1/см^3	Активность, Ки	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (расчет)	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (эксперимент)	Концентрация ^{131}I , 10^{16} 1/см^3	Активность, Ки
1	-	-	2.35	9.30	-	-	2.35	9.68
2	-	-	2.67	10.56	-	-	2.56	10.10
3	-	-	3.00	11.86	-	-	2.95	11.65
4	-	-	3.49	13.79	-	-	3.27	12.93
5	-	-	3.98	15.73	-	-	3.75	14.82
Среднее по блокам	-	-	3.10	-	-	-	3.00	-
Сумма	7.4	7.3	-	61.2	6.6	6.6	-	59.2
№ блока снизу вверх	Модернизированная мишень							
	Канал 4-1				Канал 1-1			
	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (расчет)	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (эксперимент)	Концентрация ^{131}I , 10^{16} 1/см^3	Активность, Ки	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (расчет)	Поток в канале, $10^{13} \text{ н}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$ (эксперимент)	Концентрация ^{131}I , 10^{16} 1/см^3	Активность, Ки
1	-	-	1.75	26.34	-	-	1.52	22.86
2	-	-	2.16	32.53	-	-	2.04	30.66
3	-	-	2.45	36.92	-	-	2.47	37.19
4	-	-	2.97	44.60	-	-	2.80	42.13
5	-	-	3.29	49.50	-	-	3.29	49.54
Среднее по блокам	-	-	2.53	-	-	-	2.43	-
Сумма	7.4	7.3	-	190	6.6	6.8	-	182

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты расчетов показывают существенное практически трехкратное увеличение в модернизированной мишени накопления общей активности целевого радионуклида ^{131}I , хотя удельная концентрация ^{131}I в первоначальной мишени немного (около 20%) уменьшается, вероятно, вследствие изменения характери-

стик нейтронного газа внутри мишени.

При замене оболочки из САВ-1 на нержавеющую сталь уменьшается вероятность разгерметизации мишени с последующей утечкой ^{131}I , что является большим преимуществом. Следует, однако, отметить уменьшение до 10% суммарного выхода ^{131}I при такой замене, вероятно, из-за поглощения части нейтронов в оболочке из стали, но при более полном извлечении целевого радионуклида суммарный выход ^{131}I может быть существенно увеличен

Таким образом, для реактора ВВР-ц существует трехкратный резерв увеличения наработки изотопа медицинского назначения ^{131}I для производства радиофармпрепаратов. Себестоимость препарата существенно снизится, что сделает более доступными для населения медицинские услуги по диагностике и терапии онкозаболеваний.

Литература

1. Колесов В.В., Кочнов О.Ю., Волков Ю.В., Украинцев В.Ф., Фомин Р.В. Создание прецизионной модели реактора ВВР-ц для последующей оптимизации его конструкции и наработки ^{99}Mo и других радионуклидов // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – №.4. – С. 129-133.
2. Judith F., Briesmeister, Ed. «MCNP – A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport. Version 3A», LANL report LA7396-M, Rev.2, 1986.
3. VisualBurnOut. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2009617021. Зарегистрировано в Реестре программ для ЭВМ 9 декабря 2009 г.
4. Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Рудик А.П. Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 575 с.
5. Hermann O.W. and Westfall R.M. ORIGEN-S, Scale System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms. ORNL, MARTIN MARIETTA ENERGY SYS., NUREG/CR-0200. Vol. 2, Sec. F7, 1992.

Поступила в редакцию 17.05.2013 г.

Авторы

Кочнов Олег Юрьевич, ведущий инженер, доктор техн. наук
E-mail: kochnov2000@mail.ru

Колесов Валерий Васильевич, доцент, канд. физ.-мат. наук
E-mail: kolesov@iate.obninsk.ru

Фомин Роман Васильевич, аспирант
E-mail: sparck22@yandex.ru

Жердев Геннадий Михайлович, доцент, канд. физ.-мат. наук
E-mail: jerdev@ippe.ru

UDC 621.039.51

ASSESSMENT OF THE INCREASING IN ^{131}I PRODUCTION DUE TO IMPROVED TELLURIUM TARGET IN THE WWR-C REACTOR CORE

Kochnov O. Yu., Kolesov V.V., Fomin R.V., Jerdev G.M.

Obninsk Institute for Nuclear Power Engineering, National Nuclear Research University «MEPhI». 1 Studgorodok, Obninsk, Kaluga reg., 249040 Russia

ABSTRACT

Currently, the problem of expanding the production of ^{131}I radionuclide for medical purposes is still relevant. The main consumer of this product in the European region is the MRRC of the Russian Ministry of Healthcare (Obninsk). ^{131}I production at the Obninsk Branch of the JSC “Karpov Institute of Physical Chemistry” is insufficient and requires additional supplies of ^{131}I from NIIAR (Dimitrovgrad). On the other hand, due to the fact that the half-life of ^{131}I is only eight days, its

transportation over long distances is not feasible. Therefore, an increase in this isotope production at the Obninsk Branch of the Karpov Institute can bring significant economic benefits.

At present a new design of the target for ^{131}I production has been developed. However, comparative assessment of standard and modified targets efficiency has not been performed so far.

This paper presents some estimates of ^{131}I production with both targets which were irradiated in the WWR-c reactor. It is shown that a new target provides a significant (by a factor of three) increase in ^{131}I production, while specific concentration of ^{131}I in the initial target is slightly (about 20%) decreased.

We have also investigated replacing aluminum alloy target shell with one made of stainless steel and found a 20% decrease in the ^{131}I yield.

The comparison between the calculated ^{131}I yield and the actual ^{131}I yield testifies that the cumulated ^{131}I yield can be significantly increased.

Key words: WWR-c reactor, tellurium target, ^{131}I production.

REFERENCES

1. Kolesov V.V., Kochnov O.Yu., Volkov Yu.V., Ukraintsev V.F., Fomin R.V. Sozdaniye precisionnoj modeli reaktora VWR-c dlya posleduyschej optimizacii ego konstrukcii i narabotki ^{99}Mo i drugih radionuclidov. *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika*. 2011, v.4, pp. 129-133.
2. Judith F. Briesmeister, Ed., "MCNP – A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport. Version 3A", LANL report LA7396-M, rev.2, 1986.
3. VisualBurnOut. Svidetelstvo o gosudarstvennoi registracii programmy dlya EVM №2009617021. Zaregistrirovano v Reestre program dlya EVM 9/12/2009 (in Russian).
4. Gerasimov A.S., Zaritskaya T.S., Rudik A.P. Spravochnik po obrazovaniyu nuclidov v yadernuh reaktorah. Moscow, Energoatomizdat Publ., 1989. 575 p. (in Russian).
5. Hermann O.W., Westfall R.M. ORIGEN-S, Scale System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Assotiated Radiation Source Terms. ORNL, MARTIN MARIETTA ENERGY SYS., NUREG/CR-0200, v. 2, sec. F7, 1992.

Authors

Kochnov Oleg Yu'evich, Chief Engineer, Dr. Sci. (Engineering)

E-mail: kochnov2000@mail.ru

Kolesov Valerij Vasil'evich, Associate Professor, Cand. Sci. (Phys.-Math.),

E-mail: kolesov@iate.obninsk.ru

Fomin Roman Vasil'ievich, Postgraduate Student

E-mail: sparck22@yandex.ru

Jerdev Gennadij Mihajlovich, Associate Professor, Cand. Sci. (Phys.-Math.),

E-mail: jerdev@ippe.ru