

УДК 542.548.:546.44

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫХОДОВ ^{89}Sr И ^{90}Sr ПРИ ОБЛУЧЕНИИ SrCO_3 В НЕЙТРОННОЙ ЛОВУШКЕ РЕАКТОРА СМ

© 2014 Р.А. Кузнецов¹, В.А. Тарасов¹, Е.Г. Романов¹, П.С. Буткалюк¹, И.В. Целищев¹, Д.В. Козлов²

¹ ОАО “ГНЦ НИИАР”, г.Димитровград

² Научно-исследовательский технологический институт им. С.П.Капицы
Ульяновского государственного университета

Поступила в редакцию 16.12.2014

Приведены результаты расчетно-экспериментального моделирования реакторного накопления ^{89}Sr при облучении изотопно-обогащенного карбоната ^{88}Sr . Облучение в нейтронной ловушке реактора СМ в течение 25-30 суток позволяет получить ^{89}Sr с удельной активностью 0,5-0,6 Ки/г, доля примесных радионуклидов стронция составляет $(0,6-1) \cdot 10^{-5}\%$ (^{90}Sr) и $(4-6) \cdot 10^{-2}\%$ (^{85}Sr).

Ключевые слова: высокопоточный реактор СМ, ^{89}Sr , ^{90}Sr , нейтронные сечения, карбонат стронция.

ВВЕДЕНИЕ

Препарат $^{89}\text{SrCl}_2$ широко применяется в ядерной медицине для паллиативной терапии костных метастазов. В ОАО “ГНЦ НИИАР” создан и используется более 15 лет технологический процесс получения радионуклида ^{89}Sr , основанный на пороговой реакции $^{89}\text{Y}(n,p)^{89}\text{Sr}$, протекающей на быстрых нейтронах. Используемый для облучения реактор БОР-60 в настоящее время переориентируется на решение материаловедческих задач ядерной энергетики, что ограничивает его доступность для крупномасштабной наработки радионуклидов. Альтернативный подход для получения стронция-89 – облучение изотопно-обогащенного ^{88}Sr в высокопоточном реакторе СМ (см. рис. 1).

Одновременно с целевым ^{89}Sr в материале мишени нарабатывается радионуклид ^{90}Sr (рис. 1), а присутствие в стартовом материале изотопа ^{84}Sr (даже в незначительном количестве) приводит к образованию примеси радионуклида ^{85}Sr . Содержание примесей радиоактивных изотопов стронция в препарате стронция-89 не должно превышать (относительно активности основного радионуклида ^{89}Sr) $2 \cdot 10^{-4}\%$ и $1 \cdot 10^{-3}\%$ для ^{90}Sr и ^{85}Sr , соответствен-

но. В отличие от других примесей, отделение изотопов стронция от целевого ^{89}Sr химическими методами после облучения невозможно. Следовательно режимы облучения должны обеспечивать наработку радионуклидов стронция на уровне, соответствующем требованиям к препарату.

Как правило, расчетные модели кинетики накопления как целевого радионуклида, так и примесных радионуклидов, образующихся при облучении стартового материала в реакторе, основываются на ядерно-физических данных, доступных из различных библиотек (ENDF/B, JEF, JEFF, JENDL, RUSFOND и др.). Вместе с тем, во многих случаях необходимо знание эффективных сечений ядерных реакций, учитывающих характеристики спектров нейтронов в конкретных позициях облучения, особенности режимов облучения и др. Оценка эффективных сечений проводится, как правило, на основании измерения выхода радионуклидов, образующихся при облучении специально подготовленных образцов.

В рамках настоящей работы проводилась оценка выхода радионуклидов при облучении образцов природного стронция и стронция, обогащенного по нуклиду ^{88}Sr , в нейтронной ловушке реактора СМ, обеспечивающей высокую плотность потока тепловых нейтронов. Оценка проводилась расчетным способом и экспериментально.

РАСЧЕТНЫЕ ОЦЕНКИ

Для определения нейтронно-физических характеристик (НФХ) в облучаемых объемах был проведен прецизионный расчет по программе MCNP [1], использующей метод Монте-Карло. Была задана трехмерная модель реакторной установки (РУ СМ) с реальной загрузкой каналов отражателя, ячеек активной зоны и центральной нейтронной ловушки.

Кузнецов Ростислав Александрович, кандидат химических наук, директор отделения радионуклидных источников и препаратов. E-mail: orip@niiar.ru

Тарасов Валерий Анатольевич, заместитель директора отделения радионуклидных источников и препаратов. E-mail: orip@niiar.ru

Романов Евгений Геннадьевич, кандидат технических наук, начальник лаборатории. E-mail: orip@niiar.ru

Буткалюк Павел Сергеевич, старший научный сотрудник. E-mail: orip@niiar.ru

Целищев Иван Васильевич, начальник управления. E-mail: orip@niiar.ru

Козлов Дмитрий Владимирович, кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории. E-mail: kozlovdtv@ulsu.ru

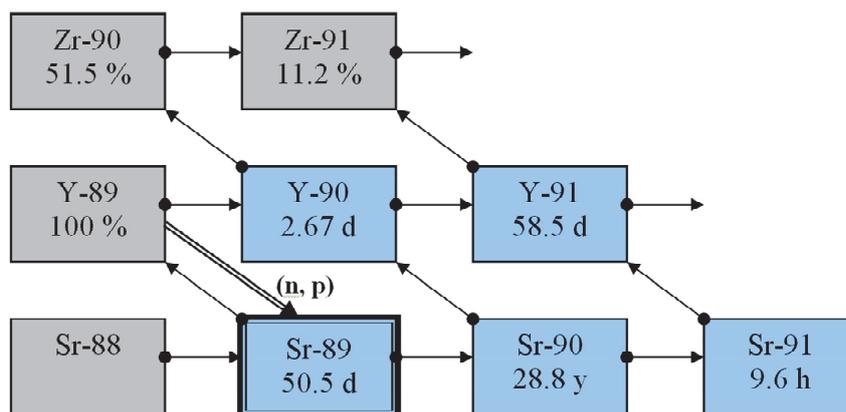


Рис. 1. Схема трансмутации ядер при облучении стронция, обогащенного по изотопу ⁸⁸Sr, нейтронами ядерного реактора

В качестве регистрируемых нейтронных функционалов были избраны: плотность потока нейтронов в четырёх энергетических группах; скорости реакции (n, γ) на изотопах цепочки, позволяющие проверить используемые при расчёте трансмутации ядерные константы; скорость реакции (n, γ) на ⁵⁹Co для определения температуры нейтронного газа:

$$T_{ng} = 293,6 \cdot \pi / 4 \cdot (37,2 \cdot F / R)^2,$$

где F – плотность потока тепловых нейтронов, R – скорость реакции (n, γ) на ⁵⁹Co в тепловой группе.

Результаты моделирования условий облучения представлены в табл. 1, где приведены значения НФХ, усреднённые по объёму образцов карбоната стронция в каждой из ампул.

Моделирование превращений ядер при облучении нейтронами проводилось с использованием программы ChainSolver [2], позволяющей учитывать эффекты резонансного самоэкранирования в облучаемом материале, а также фактический график работы реактора с детальным заданием уровня мощности. Программа позволяет варьировать значения ядерных констант, определяющих скорости превращения ядер при облучении нейтронами. Моделируемая цепочка трансмутации нуклидов представлена на рис. 2. Литературные данные о сечениях ядерных реакций, использованные для расчета выходов продуктов активации стронция приведены в табл. 2.

Значения активностей изотопов стронция на

Таблица 1. Условия облучения экспериментальных стронциевых ампул

Параметр	Ампула №1	Ампула №2	Ампула №3	Ампула №4
Φ (E<0,5 эВ), см ⁻² с ⁻¹	1,39•10 ¹⁵	1,47•10 ¹⁵	1,69•10 ¹⁵	1,69•10 ¹⁵
Φ (0,5 эВ<E<100 эВ), см ⁻² с ⁻¹	1,06•10 ¹⁴	9,57•10 ¹³	1,33•10 ¹⁴	1,27•10 ¹⁴
Φ (100 эВ <E<100 кэВ), см ⁻² с ⁻¹	1,27•10 ¹⁵	1,17•10 ¹⁵	1,01•10 ¹⁵	1,02•10 ¹⁵
Φ (E>100 кэВ), см ⁻² с ⁻¹	1,77•10 ¹⁵	1,86•10 ¹⁵	1,35•10 ¹⁵	1,33•10 ¹⁵
Температура нейтронного газа, К	459	458	480	483
Время облучения, эфф. суток	18,25	18,25	21,39	21,39

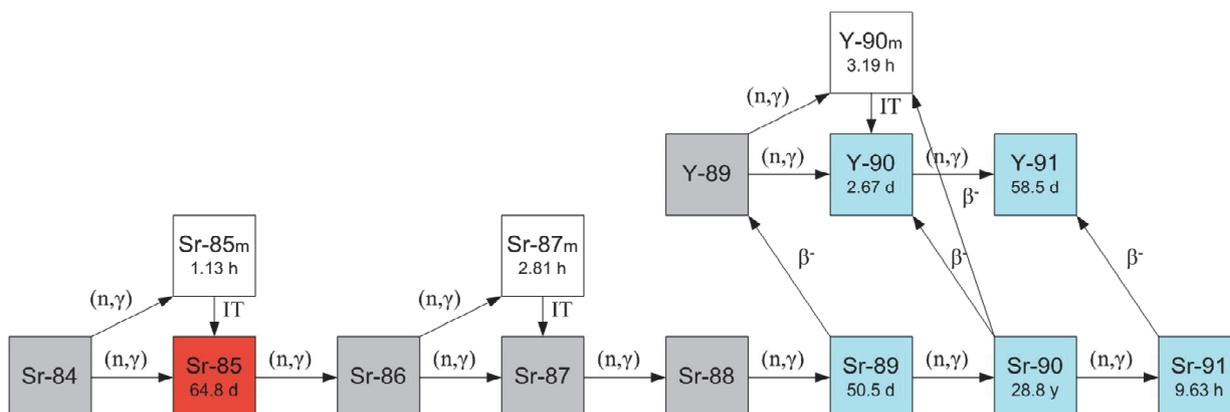


Рис. 2. Цепочка трансмутации, заданная в программе ChainSolver

Таблица 2. Сечения ядерных реакций, происходящих при облучении изотопов стронция нейтронами (значения, использованные для расчета выходов продуктов активации стронция, выделены подчеркиванием)

Нуклид	Сечение реакции (n,γ) при энергии 0,0253 Эв, барн	Резонансный интеграл реакции (n,γ), барн	Сечения для реакций с нейтронами спектра деления, барн		Источник
			(n,γ)	(n,p)	
⁸⁴ Sr	<u>0,95</u>	<u>11,31</u>	-	-	ChainSolver [2]
	1,28	10,00	-	-	S. F. Mughabghab et al 2006[3]
	0,82	11,18	<u>0,072</u>	4,01•10 ⁻³	ENDF/B-VII.1 [4]
⁸⁵ Sr	<u>21,76</u>	<u>166,21</u>	<u>0,043</u>	0,012	JEFF-3.0/A[4]
⁸⁸ Sr	0,0580	0,0650	<u>2,36•10⁻³</u>	4,94•10 ⁻⁶	ChainSolver
	0,0087	<u>0,0248</u>	3,37•10 ⁻³	1,18•10 ⁻⁵	ENDF/B-VII.1
	<u>0,0058</u>	0,0237	1,93•10 ⁻³	1,19•10 ⁻⁵	JENDL-4.0[4]
⁸⁹ Sr	<u>0,42</u>	-	2,44•10 ⁻³	2,80•10 ⁻⁶	ChainSolver
	0,42	<u>0,40</u>	2,70•10 ⁻³	5,64•10 ⁻⁶	CENDL-3.1[4]
⁹⁰ Sr	0,90	-	<u>4,20•10⁻³</u>	1,08•10 ⁻⁶	ChainSolver
	<u>0,90</u>	<u>0,48</u>	5,94•10 ⁻³	7,09•10 ⁻⁶	JEFF-3.1.1[4]
⁸⁹ Y	<u>1,28</u>	<u>1,00</u>	<u>6,26•10⁻³</u>	<u>2,0•10⁻⁴</u>	ChainSolver
⁹⁰ Y	<u>3,30</u>	<u>2,58</u>	5,42•10 ⁻³	-	ENDF/B-VII.1
	3,50	4,65	<u>1,77•10⁻²</u>	4,20•10 ⁻⁴	JEF-2.2[4]
⁹¹ Y	<u>1,40</u>	-	1,22•10 ⁻²	1,04•10 ⁻⁵	ChainSolver
	1,40	<u>2,77</u>	<u>1,25•10⁻²</u>	1,45•10 ⁻⁵	ENDF/B-VII.1

момент окончания облучения, полученные в результате прогнозных расчетов, приведены в табл. 3.

Кинетика процесса накопления изотопов стронция при облучении показана на рис. 3.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для изготовления опытных образцов использовали карбонат стронция природного изотопного состава и карбонат стронция, обогащенный по изотопу ⁸⁸Sr. Изотопный состав материалов (табл. 4) определяли масс-спектральным анализом, выполненным при помощи масс-спектрометра МИ1201В стрехленточным термоионизационным источником ионов и электронным умножителем ВЭУ-2А.

Подготовка стартового материала к облучению заключалась в изготовлении таблеток пресованием с последующим спеканием в трубчатой

печи при 730 °С. Таблетки использовались для формирования сердечника ампул, представляющих собой трубки из нержавеющей стали 12Х18Н10Т (Ø 8,9х0,5 мм, длина L = 51 мм) с концевыми деталями. Параметры облучаемых ампул приведены в табл.5.

После загрузки стартового материала ампулы заполнялись гелием и герметизировались аргонодуговой сваркой. В реактор ампулы загружались в составе специального пенала, который представляет собой стальную трубку Ш10х0,3 мм с концевыми элементами и перфорацией на боковой поверхности для протекания теплоносителя через внутренний объем. Позиционирование ампул в пенале осуществлялось с использованием алюминиевых трубок (рисунок 4). Нижний край ампул №1 и №4 располагался на высоте -0,9 см относительно центральной плоскости активной зоны, нижний край ампулы

Таблица 3. Расчетные значения активности основных продуктов активации стронция на момент окончания облучения

№ ампулы	A(⁸⁹ Sr), Бк	A(⁸⁵ Sr), Бк	A(⁹⁰ Sr), Бк
1	1,93•10 ¹⁰	8,7•10 ⁶	4,1•10 ⁴
2	1,95•10 ¹⁰	1,6•10 ¹⁰	5,1•10 ⁴
3	2,16•10 ¹⁰	9,9•10 ⁶	6,0•10 ⁴
4	2,28•10 ¹⁰	1,0•10 ⁷	6,6•10 ⁴

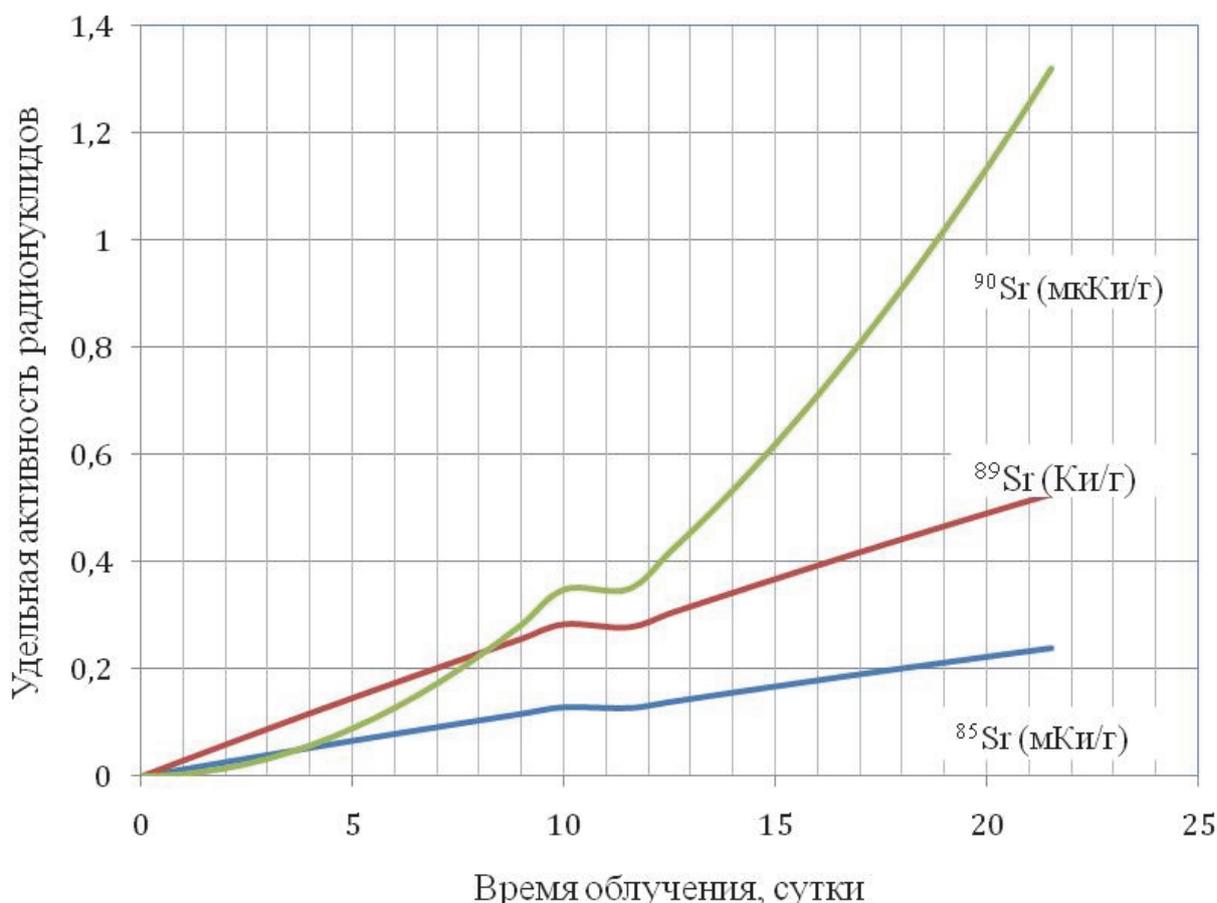


Рис. 3. Зависимости удельной активности изотопов стронция от времени облучения

Таблица 4. Изотопный состав стартового материала

Изотоп	Относительное содержание изотопа, атомных %	
	^{nat} SrCO ₃	⁸⁸ SrCO ₃
⁸⁴ Sr	0,56	0,001±0,001
⁸⁶ Sr	9,86	0,033±0,001
⁸⁷ Sr	7,00	0,059±0,001
⁸⁸ Sr	82,58	99,907±0,001

Таблица 5. Параметры ампул с карбонатом стронция

Параметр	Ампула №1	Ампула №2	Ампула №3	Ампула №4
Материал таблеток	⁸⁸ SrCO ₃	^{nat} SrCO ₃	⁸⁸ SrCO ₃	⁸⁸ SrCO ₃
Масса материала в сердечнике, г	1,60	2,52	1,62	1,66
Диаметр сердечника, мм	7,05	6,80	7,05	6,40
Длина сердечника, мм	18,35	22,95	16,9	15,6
Плотность материала в сердечнике, г/см ³	2,22	3,02	2,46	3,27
Концентрация ядер ⁸⁸ Sr в мишени, см ⁻³	9,03•10 ²²	1,23•10 ²²	1,00•10 ²²	1,33•10 ²²

№ 2 и №3 – на высоте -6,0 см.

Пеналы с ампулами облучали в центральной нейтронной ловушке реактора СМ. Ампулы № 1,2 облучались в течение двух малых кампаний реактора, энергонаработка реакторной установки составила 18,25 эфф. суток. Ампулы №№ 3,4 облучались в течение трёх малых кампаний ре-

актора, энергонаработка реактора составила 21,39 эфф. суток.

После облучения ампулы подвергались механической разделке, таблетки карбоната стронция растворялись в азотной кислоте. Растворы нитрата стронция отфильтровывались через фильтр “зеленая лента” и от них отбирались аликвоты

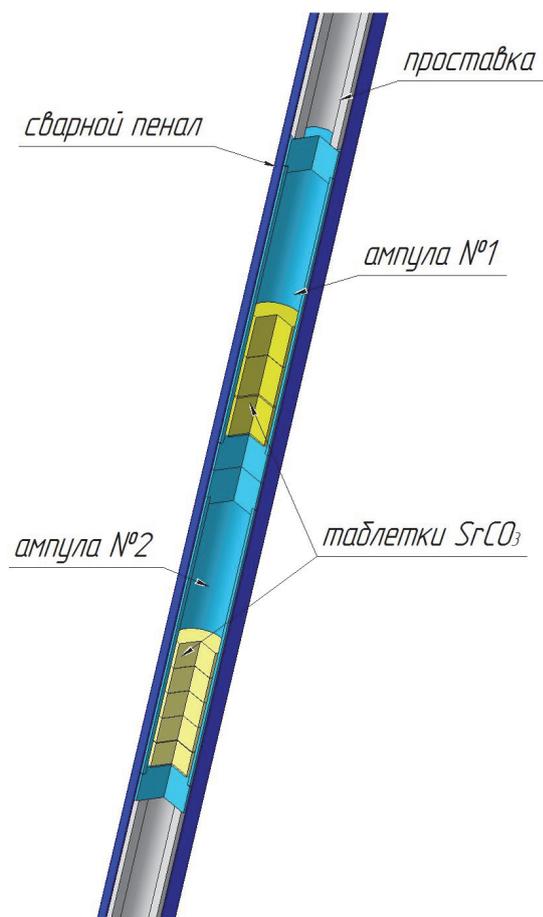


Рис. 4. Схема размещения облучаемых образцов в пенале для облучения

для измерения активности радионуклидов стронция (суммарная и удельная активность ^{89}Sr , относительная активность ^{85}Sr , относительная активность ^{90}Sr).

Для измерения активности радионуклида ^{89}Sr применяли жидкостно-сцинтилляционный спектрометр "QANTULUS", в качестве сцинтиллятора использовали сцинтиллятор марки OptiPhaseHiSafe.

Содержание радионуклида ^{85}Sr определяли с помощью гамма-спектрометра на основе полупроводникового Ge(Li)-детектора типа ДГДК-В150с энергетическим разрешением 3,0 кэВ по линии 1,3 МэВ. Обработку гамма-спектров проводили при помощи стандартного программного обеспечения фирмы "ГринСтар" с алгоритмом для анализа сложных мультиплетов.

Большое количество радиоактивных примесей в облученных образцах делает невозможным прямое определение удельной активности ^{89}Sr и доли ^{90}Sr . Поэтому для измерения указанных параметров аликвотные части растворов облученного материала подвергали очистке от примесей методом экстракционной хроматографии. Для этого растворы облученных образцов пропускали через колонки с сорбентом Sr.spectresin (TRISKEMInternational, Франция). Колонки

промывали азотной кислотой с концентрацией 4 моль/л и десорбировали стронций бидистиллированной водой. От очищенных растворов отбирали аликвоты, которые использовались для определения удельной активности ^{89}Sr и доли ^{90}Sr .

Определение удельной активности выполняли по следующей методике.

Аликвоту раствора упарили досуха, остаток после упаривания растворили в 3 мл дистиллированной воды, перенесли в мерные колбы объемом 25 мл, добавили 15 мл этиленгликоля, 3 мл раствора NaOHс концентрацией 0,05 моль/л, перемешали и охладили в течение 15 мин в бане со льдом. Затем добавили по 3,0 мл 0,08 % раствора мурексида в 80% этиленгликоле, перемешали, довели водой объем раствора в колбе до метки и вновь охладили в бане со льдом в течение 15 мин.

Измерение оптической плотности полученных растворов проводили на спектрофотометре BeckmanDU 530 относительно раствора сравнения при $\lambda = 510$ нм в кварцевой кювете объемом с длиной оптического пути 1,0 см. Концентрацию стронция в растворе определяли с помощью калибровочного графика. Удельную активность в момент окончания облучения рассчитывали по формуле:

$$A_{уд} = \frac{A_{изм}}{3,7 \cdot 10^4 \cdot C(\text{Sr})} \cdot 2^{\frac{\Delta t}{T_{1/2}}},$$

где $A_{уд}$ – удельная активность стронция, Ки/г;
 $C(\text{Sr})$ – концентрация стронция, мкг/мл;
 $A_{изм}$ – измеренная объемная активность, Бк/мл;
 Δt – время с момента окончания облучения, сут;
 $T_{1/2}$ – период полураспада ^{89}Sr , сут

Для определения доли радионуклида ^{90}Sr отбирали аликвоты очищенных растворов, содержащих не менее $2 \cdot 10^8$ Бк ^{89}Sr . Аликвоты выдержали в течение 7суток для накопления ^{90}Y , который является дочерним продуктом распада ^{90}Sr . После этого провели выделение ^{90}Y методом экстракционной хроматографии в системе Д2ЭГФК/тефлон – HNO_3 . Методика основана на извлечении солей иттрия сорбентом из азотной кислоты с концентрацией 0,5 моль/л и последующем элюировании азотной кислоты с концентрацией 6 моль/л. Всего проводили два цикла очистки, которые позволяют получить коэффициент очистки иттрия от стронция $\sim 10^6$. Активность ^{90}Y в полученном растворе измеряли методом жидкостно-сцинтилляционной спектроскопии.

СРАВНЕНИЕ РАСЧЕТНЫХ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

В табл. 6 обобщены расчетные и экспериментальные значения удельной активности ^{89}Sr , соотношения активностей ^{85}Sr : ^{89}Sr и ^{90}Sr : ^{89}Sr .

Таблица 6. Сравнение расчетных и экспериментальных данных

Ампула	Соотношения активностей $^{85}\text{Sr}:^{89}\text{Sr}$, %		Соотношения активностей $^{90}\text{Sr}:^{89}\text{Sr}$, %		Удельная активность ^{89}Sr , Ки/г	
	Расчетные оценки	Экспериментальные данные	Расчетные оценки	Экспериментальные данные	Расчетные оценки	Экспериментальные данные
№1	$4,7 \cdot 10^{-2}$	$5,8 \cdot 10^{-2}$	$2,14 \cdot 10^{-4}$	$6,1 \cdot 10^{-5}$	0,52	0,562
№2	-	-	$2,66 \cdot 10^{-4}$	$\sim 4 \cdot 10^{-5}$	0,43	0,473
№3	$4,6 \cdot 10^{-2}$	$4,6 \cdot 10^{-2}$	$2,78 \cdot 10^{-4}$	$9,4 \cdot 10^{-5}$	0,61	0,581
№4	$4,4 \cdot 10^{-2}$	$4,4 \cdot 10^{-2}$	$2,89 \cdot 10^{-4}$	$1,04 \cdot 10^{-4}$	0,62	0,678

Приведенные в табл. 6 данные показывают хорошее совпадение расчетных и экспериментальных значений для удельной активности ^{89}Sr , а также для соотношения активностей $^{85}\text{Sr}:^{89}\text{Sr}$. Это говорит не только о надежности применяемой системы ядерно-физических констант, но и, что более важно, о корректном определении нейтронно-физических характеристик в объеме облучаемого материала;

Большие отличия (завышение в ~ 3 раза) расчетных значений соотношения активностей $^{90}\text{Sr}:^{89}\text{Sr}$ от экспериментальных объясняются недостоверными данными по сечению ядерной реакции $^{89}\text{Sr}(n, \gamma)^{90}\text{Sr}$.

Дальнейшее совершенствование расчетной модели связано с определением эффективного сечения реакции $^{89}\text{Sr}(n, \gamma)^{90}\text{Sr}$ (переход к одногрупповому представлению скорости реакции).

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки России (договор от "12" февраля 2013 г. № 02.G25.31.0015).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C, Editor Briesmeister J.F., Report LA-13709-M, 2000. Los Alamos, USA.
2. Программа ChainSolver, Romanov, E.G.2003, A tool to calculate nuclear transmutations in a neutron flux, IAEA 1404 code. URL: <http://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/iaea1404> (дата обращения 12.11.2014).
3. Mughabghab S.F. Atlas of Neutron Resonances, Resonance Parameters and Thermal Cross Sections Z=1-100, 5th Edition, National Nuclear DataCenter BNL Upton, USA, 2006.
4. Программа JANIS 3.4, a Java-based nuclear data display program, NEA 1760 code. URL: <http://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/nea-1760/> (дата обращения 12.11.2014).

EVALUATION OF ^{89}Sr AND ^{90}Sr YIELD FOR SrCO_3 IRRADIATIONS IN SM REACTOR NEUTRON TRAP

© 2014 R.A. Kuznetsov¹, V.A.Tarasov¹, E.G. Romanov¹, P.S. Butkalyuk¹, I.V. Tselishev¹, D.V. Kozlov²

¹Joint Stock Company "State Scientific Center – Research Institute of Atomic Reactors", Dimitrovgrad

²Research Institute of Technology named after S.P. Kapitsa of Ulyanovsk State Technical University

The results of numerical simulation and experimental studies of ^{89}Sr production by irradiation of ^{88}Sr -enriched carbonate in a nuclear reactor are shown. ^{89}Sr samples with specific activity of 0.5-0.6Ci/g are produced by use of 25-30 days irradiation in SM reactor neutron trap. Impurities are estimated to be of value $(0.6-1.0) \cdot 10^{-5}\%$ for ^{90}Sr и $(4.0-6.0) \cdot 10^{-2}\%$ for ^{85}Sr .

Key words: high-flux reactor SM, ^{89}Sr , ^{90}Sr , neutron cross-sections, strontium carbonate

Rostislav Kuznetsov, Candidate of Chemistry, Director of Isotope Department. E-mail: orip@niiar.ru

Valery Tarasov, Deputy Director of Isotope Department. E-mail: orip@niiar.ru

Evgenii Romanov, Candidate of Technics, Head of Isotope Production Laboratory. E-mail: orip@niiar.ru

Pavel Butkalyuk, Senior Researcher of Isotope Department. E-mail: orip@niiar.ru

Ivan Tselishev, Laboratory Head. E-mail: orip@niiar.ru

Dmitry Kozlov, Candidate of Physics and Mathematics, Head of Laboratory of Materials. E-mail: kozlovdv@ulsu.ru