

**ТОМСКИЙ
ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ
УНИВЕРСИТЕТ**



На правах рукописи

Салодкин Степан Сергеевич

**ПЕРЕДНЕЕ ОХЛАЖДЕНИЕ ТВЕРДОТЕЛЬНОЙ МИШЕНИ ПРИ
ПРОИЗВОДСТВЕ РАДИОНУКЛИДОВ ЙОДА НА ЦИКЛОТРОНЕ**

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

1.3.14 – Теплофизика и теоретическая теплотехника

Томск – 2024

Работа выполнена в Национальном исследовательском Томском политехническом университете

Научный руководитель:

Тюрин Юрий Иванович

д.ф.-м.н., профессор отделения экспериментальной физики ИЯТШ ТПУ

Официальные оппоненты:

Михайлов Михаил Михайлович

д.ф.-м.н., профессор, заведующий лабораторией радиационного и космического материаловедения федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники»

Коваль Николай Николаевич

д.ф.-м.н., профессор, главный научный сотрудник лаборатории плазменной эмиссионной электроники федерального государственного бюджетного учреждения науки «Институт сильноточной электроники СО РАН».

Защита состоится 17 декабря 2024 г. в 15:00 на заседании диссертационного совета ДС.ТПУ.04 Национального исследовательского Томского политехнического университета по адресу: 634034, г. Томск, пр. Ленина, д. 43, уч. корпус 3, ауд. 122.



С диссертацией можно ознакомиться в научно-технической библиотеке Томского политехнического университета и на сайте dis.tpu.ru при помощи QR-кода.

Автореферат разослан _____ 2024 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета ДС.ТПУ.04, к.т.н.

A handwritten signature in blue ink, consisting of a stylized 'Г' followed by a horizontal line and a small flourish.

Гвоздяков Д.В.

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования. В диссертационной работе поставлена актуальная научная задача, состоящая в интенсификации теплообмена в облучаемой оксидной мишени при производстве нуклидов на основе радиойода с использованием нового подхода к охлаждению [1].

Радионуклиды (РН) и меченые ими соединения широко применяются для проведения диагностических исследований в различных областях медицины, таких как кардиология, онкология, эндокринология и другие. Известно, что в организме человека, помимо основных пяти элементов (кислорода, водорода, углерода, азота и кальция), содержится до 70 других элементов (йод, калий, железо, хлор и др.). Поэтому введение РН, обладающего химическими свойствами определенного элемента-органогена, или его введение в форме соответствующего химического соединения, позволяет получать информацию о физиологических процессах и патофизиологических изменениях, происходящих в различных органах [2].

Радионуклиды применяются в ядерной медицине в основном в виде радиофармацевтических лекарственных препаратов (РФЛП) для ранней диагностики заболеваний различных органов человека и для целей терапии. Радиофармацевтическим препаратом называется лекарственный препарат, содержащий в готовом для применения состоянии один или несколько радионуклидов (радиоактивных изотопов) в качестве действующего вещества или в составе действующего вещества [3].

Современные методы диагностики в области ядерной медицины включают в себя позитронно-эмиссионную томографию (ПЭТ) и однофотонную эмиссионную компьютерную томографию (ОФЭКТ). Диагностические РФЛП включают гамма- или позитрон-излучающие радионуклиды, которые служат как информационные маркеры. Излучение этих нуклидов проникает за пределы организма и регистрируется внешними детекторами. РФЛП могут накапливаться в здоровых или патологических тканях, что позволяет визуализировать не только анатомические структуры, как при обычной томографии, но и метаболические процессы на уровне клеток. Эти методы активно применяются в лечебной деятельности. Позитронно-эмиссионная томография считается «золотым стандартом» в диагностике раковых заболеваний, поскольку обеспечивает выявление первичных опухолей на самых ранних стадиях развития и позволяет сканировать весь организм для определения наличия или отсутствия метастазов. Эти аспекты крайне важны для разработки тактики лечения и ранней оценки эффективности терапии [4].

Радионуклиды йода используются в ядерной медицине как в диагностике методами ПЭТ и ОФЭКТ [5], так и в брахитерапии [6]. Данные изотопы производят на медицинских циклотронах с использованием ускоренного пучка протонов либо дейтронов [5; 7].

Одним из наиболее распространенных материалов мишени для получения радиойода является обогащенный по определённому изотопу теллур, в форме металла либо диоксида

теллура [5; 8]. Общей проблемой металлических мишеней является низкая температура плавления элементарного теллура (452°C) и последующая потеря радиоактивного йода из матрицы [9]. Данных недостатков лишена мишень из порошкообразного TeO_2 , обогащённого по определённому изотопу и нанесённого на подложку из тугоплавкого материала (Pt, Ta) [10; 11]. Температура плавления TeO_2 (733°C) выше, чем у металла, однако его теплопроводность достаточно низкая ($3 \text{ Вт/м}\cdot\text{К}$), что затрудняет процесс передачи тепла от вещества мишени к охлаждаемой подложке при облучении высоким током пучка. Таким образом, для увеличения интенсивности наработки радионуклидов, необходимо применять дополнительное охлаждение мишени.

По этой причине, с одной стороны, рабочий слой мишенного материала должен быть минимальным для обеспечения эффективного теплосъёма, а с другой – количественный выход радионуклида должен быть сопоставим с выходом из «толстой» мишени [12]. Кроме того, при производстве радиоизотопов на циклотроне для обеспечения максимальной активности 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 [5; 9]. 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.

В известной литературе различают два способа охлаждения мишени при облучении: вода + воздух и вода + гелий. В первом случае задняя поверхность мишени охлаждается проточной водой, передняя – потоком воздуха [7; 13]; во втором случае задняя поверхность также охлаждается водой, передняя – потоком гелия [14–16]. Несмотря на видимые успехи, достигнутые при использовании данных способов, мощность, отводимая от мишени в процессе облучения, остаётся низкой и составляет значения порядка $350\text{--}500 \text{ Вт}$ [17; 18], что не удовлетворяет возможностям рабочего тока пучка современных циклотронов.

Сам по себе TeO_2 является плохо изученным материалом с точки зрения физико-химических свойств. В имеющейся литературе не хватает данных о зависимостях его теплопроводности и плотности от температуры, нет описанных критериев разрушения мишени при её неравномерном нагревании. При этом использование именно диоксида теллура в качестве материала мишени является практически безальтернативным, ввиду простоты изготовления, выделения йода и регенерации мишени.

В данной работе объектом исследования являются процессы охлаждения твердотельной мишени при облучении её потоком заряженных частиц, предмет исследования – охлаждение мишени с помощью потока мелкодисперсно распылённой жидкости.

Цели и задачи работы.

Целью данной работы является разработка и создание нового способа охлаждения твердотельной мишени при производстве радионуклидов йода на циклотроне для ядерной медицины. Для достижения этой цели было необходимо решить следующие научные задачи:

1. Разработка устройства мелкодисперсного распыления жидкости на основе ультразвуковой колебательной системы для охлаждения передней стороны мишени;
2. Создание физико-математической модели для исследования процессов охлаждения твердотельной мишени при облучении потоком заряженных частиц;
3. Апробация нового способа охлаждения мишени на циклотроне Р7М.
4. Получение новых данных о кинетике охлаждения оксидной мишени.
5. Разработка критериев работоспособности мишени при определенных температурах.

Научная новизна исследования:

Сформулирована научная проблема исследования эффективности нового способа охлаждения передней стороны твердотельной мишени, на основе математической модели сопряженного теплообмена.

Впервые произведено охлаждение твердотельной мишени из TeO_2 мелкодисперсно распылённой водой при наработке радионуклидов йода на пучке дейтронов с энергией 13,6 МэВ, на что получен патент РФ на изобретение № 2777655 [19] (см. приложение Г).

Впервые изучены процессы испарительного охлаждения распылённой жидкости на слое TeO_2 . Показаны условия достижения оптимальных режимов охлаждения при наличии теплового потока на поверхности.

Получены новые данные о процессах отвода тепла от твердотельной оксидной мишени при облучении пучком дейтронов и охлаждении мелкодисперсно распылённой водой.

Теоретическая и практическая значимость работы:

1. Разработано устройство охлаждения твердотельной мишени с помощью потока мелкодисперсно распылённой воды при наработке радионуклидов на циклотроне.
2. Исследовано тепловое поле мишени при воздействии пучка заряженных частиц тепловой мощностью 500-800 Вт и дополнительным охлаждением передней стороны мишени мелкодисперсно распыленной водой.
3. Получены новые данные о кинетике охлаждения передней стороны мишени мелкодисперсно распыленной водой.
4. Выработаны критерии работоспособности мишени при различной мощности тепловой нагрузки
5. Экспериментально проверены характеристики тепловых полей при облучении и охлаждении оксидной мишени.
6. Разработанный способ и устройство охлаждения может использоваться на производственных радиофармацевтических площадках при наработке

радионуклидов на циклотроне.

Методология и методы исследования.

При выполнении диссертационной работы мишень из диоксида теллура создавалась методом наплавления порошка на платиновую подложку. Пучок дейтронов для облучения мишени получали на циклотроне Р7М ТПУ, измерение температуры подложки мишени производилось термопарой К-типа из сплава хромель-алюмель. Целостность мишенного слоя в перерывах между облучениями определялась визуально. Ультразвуковая колебательная система для производства потока мелкодисперсно распыленной жидкости собиралась по технологическим схемам, приведенным в [20], контроль производительности распыления осуществлялся с помощью перистальтического насоса. Численное исследование процесса облучения и охлаждения мишени выполнено при решении задач теплопроводности и конвекции с использованием программного комплекса COMSOL Multiphysics [21]. Подробное описание методик экспериментальных исследований, методов, использованных при проведении экспериментов, а также методов математического моделирования представлено в главах 2, 3 и 4.

Положения и основные результаты, выносимые на защиту:

1. Доказана высокая эффективность охлаждения твердотельной мишени при использовании разработанного устройства мелкодисперсного распыления жидкости на основе ультразвуковой колебательной системы.
2. Доказана работоспособность физико-математической модели для исследования процессов охлаждения твердотельной мишени при облучении потоком заряженных частиц.
3. Доказана работоспособность предложенного способа охлаждения при реализации технологии производства радионуклидов йода на циклотроне.
4. Разработаны рекомендации для применения полученных результатов численного моделирования теплообмена и критериев разрушения TeO_2 мишени при её облучении на циклотроне.

Достоверность полученных результатов.

Достоверность полученных результатов подтверждается физической обоснованностью разработанной модели теплоотвода, непротиворечивостью полученных результатов, их внутренним единством и соответствием существующим представлениям о процессах облучения и охлаждения твердотельной мишени. Достоверность экспериментальных данных была оценена на основе расчетов погрешностей измерений зарегистрированных физических величин.

Для подтверждения достоверности результатов математического моделирования был проведен сравнительный анализ с данными экспериментов, полученными в рамках данного исследования. Результаты расчетов температурного поля твердотельной мишени в процессе облучения удовлетворительно согласуются с данными, полученными экспериментально.

Связь работы с научными программами и грантами. Исследования выполнены при поддержке программы «УМНИК» Фонда содействия инновациям (2018).

Личный вклад автора. Проведен научно-информационный поиск и анализ состояния проблемы. Разработана математическая модель процессов облучения твердотельной мишени пучком заряженных частиц и её охлаждения потоком мелкодисперсно распыленной воды. Разработано и экспериментально апробировано устройство охлаждения мишени, в основе которого лежит ультразвуковая колебательная система, проведен анализ полученных результатов, получен патент на изобретение. Разработаны рекомендации по практическому использованию полученных результатов в производстве радионуклидов йода на циклотроне. Результаты исследования представлены на всероссийских и международных конференциях и конкурсах, подготовлены публикации по результатам исследований в журналы, индексируемые в базах данных РИНЦ, Scopus, WoS.

Апробация работы и публикации. Основные положения диссертационной работы представлены в докладах на VI Школе-конференции молодых atomщиков Сибири,- Томск, 2015; конференции "Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий материалы конференции в рамках Научной сессии НИЯУ МИФИ - Северск, 2016; VII Школе-конференции молодых atomщиков,- Томск, 2016; конференции "Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине - Томск, 2016; конференции "Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине (ФТПНПМ-2019) - Томск, 2019, IV международная конференция «Современные проблемы теплофизики и энергетики» - Москва, 2024.

Публикации. Основные результаты по теме диссертации изложены в 10 печатных изданиях, 5 из которых изданы в журналах, рекомендованных ВАК, 3 – в изданиях, индексируемых в Scopus и WoS, 5 – в тезисах докладов.

Содержание работы

Во **введении** представлены обоснование актуальности и текущее состояние уровня техники в предметной области диссертации. Сформулированы цель и задачи исследования, а также отмечены научная новизна, теоретическая и практическая значимость работы, освещены защищаемые положения, представлена методология, описан уровень апробации полученных результатов и личный вклад автора.

Первая глава представляет собой обзор литературы, посвященный производству РФП на основе изотопов йода на циклотроне.

В ядерной медицине наиболее часто используются изотопы йода, полученные ускорительным способом: ^{120}gI , ^{123}I , ^{124}I , ^{125}I (табл. 1). Данные радионуклиды производят на ускорителях заряженных частиц при облучении пучком высокоэнергетических протонов или дейтронов. Ввиду большей распространенности малых и средних медицинских ускорителей, реакции на протонах используются заметно чаще.

Данные изотопы йода имеют в своей основе одинаковые методы производства, отличающиеся только стартовым изотопом Те в мишенном веществе. В результате,

возможно создания некоторого "унифицированного" технического решения, представляющего собой технологию создания мишени, облучения и выделения целевого нуклида с приемлемыми выходами всех описанных изотопов йода.

Таблица 1 — Изотопы и их характеристики

Изотоп	Период полураспада	Тип распада	Основная реакция получения	Применение
^{120}gI	1,35 ч	β^+ : 100%	$^{120}\text{Te(p,n)}^{120}\text{I}$	ПЭТ
^{123}I	13,2 ч	ЭЗ: 100%	$^{123}\text{Te(p,n)}^{123}\text{I}$	ОФЭКТ
^{124}I	4,2 сут	β^+ : 77,3% ЭЗ: 22,7%	$^{124}\text{Te(p,n)}^{124}\text{I}$	ПЭТ + терапия
^{125}I	59,4 сут	ЭЗ: 100%	$^{125}\text{Te(p,n)}^{125}\text{I}$	Брахитерапия

Технологический цикл, в общем случае, включает в себя следующие стадии [22]:

- изготовление мишени;
- облучение пучком заряженных частиц;
- выделение радионуклида;
- мечение субстанции РФП радиоактивным йодом.

Для промышленного производства радиойода на циклотроне пучком заряженных частиц облучают мишени из теллура в виде металла или диоксида. Мишень из элементарного теллура представляет собой трехслойную систему, состоящую из металлической подложки, промежуточного никелевого слоя и слоя теллура сверху. Данную трехслойную систему получают методом гальванического нанесения щелочного раствора на медную пластину с никелевым покрытием (Рисунок 1).

Особенностью металлического теллура является более низкая температура плавления (452 °C), по сравнению с TeO_2 (733 °C), что делает невозможным выделение йода без разрушения мишени. Помимо этого, для выделения образовавшегося йода из металлических мишеней используют методы «мокрой» химии, что является более сложной технологией по сравнению с методами переработки оксидной мишени, речь о которой пойдёт дальше. Описанных выше недостатков лишена мишень, состоящая из порошка диоксида теллура, наплавленного на подложку из тугоплавкого материала (Рисунок 2). Такая мишень позволяет выделять любой радионуклид йода из мишени без её 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.



Рисунок 1 — Мишень из металлического Те, созданная с помощью электроосаждения

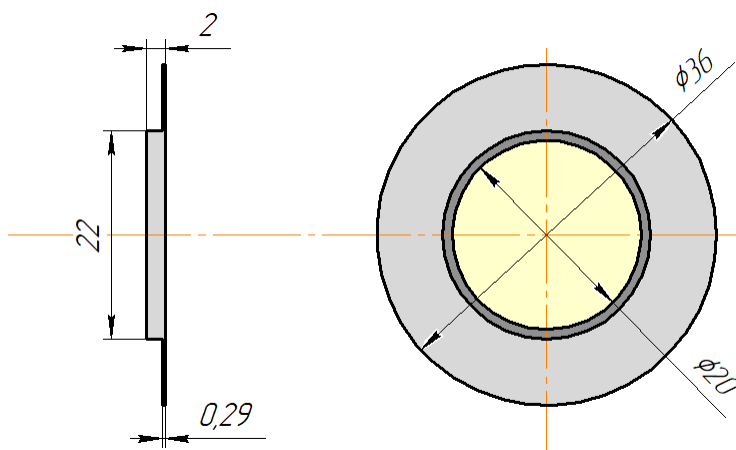


Рисунок 2 — Мишень из TeO_2 , наплавленного на Pt подложку

При облучении твердотельной мишени, для обеспечения максимального выхода целевого нуклида, используется максимальный ток пучка заряженных частиц. При этом плотность твёрдых мишеней выше, чем жидких и газообразных, а значит пробег заряженных частиц в веществе будет меньше, а потери энергии больше. Энергия, теряемая заряженными частицами в веществе мишени, рассеивается в виде тепла. Одной из самых больших проблем при разработке и облучении твердотельной мишени является отвод тепла. Избыточное тепло, выделяемое в мишени, может привести к различным неприятным последствиям, таким как уменьшение плотности мишени, химические реакции, образующиеся в материале или продуктах мишени и, наконец, разрушение мишени.

Исходя из анализа радиационных аварий циклотрона ТПУ установлено, что мишень разрушается из-за отслоения слоя диоксида теллура от металлической подложки во время облучения. Отслоение происходит не по всей поверхности контакта, а в отдельных частях мишени.

Композиционно диоксид теллура является керамикой с плохой теплопроводностью ($3 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-1} \cdot \text{К}^{-1}$), устойчивой к достаточно высоким тепловым нагрузкам без повреждения. Об этом говорит и сам способ приготовления мишени, описанный выше. Равномерно нагреваемый или охлаждаемый диоксид теллура не разрушается и не трескается. Однако тепловое воздействие пучка заряженных частиц при облучении в циклотроне сильно отличается от нагрева в вакуумной печи и имеет следующие особенности.

1. Плотность потока заряженных частиц в объеме пучка неравномерна и подчиняется гауссовскому распределению. В результате центр мишени нагревается сильнее, чем периферия.
2. Удельные потери энергии частиц при прохождении через вещество нелинейные – они увеличиваются по мере уменьшения энергии пучка и в слоях мишени, расположенных в середине и ближе к подложке тепла выделяется больше, чем на поверхности мишени. Таким образом, чем толще слой оксида, тем больше градиент температуры в веществе.

Данные особенности динамики тепловых потерь пучка вкупе с плохой теплопроводностью диоксида теллура, и различными коэффициентами теплового расширения материала мишени и подложки, приводят к образованию «горячих точек» - мест локального перегрева вещества мишени, приводящих к её разрушению. Исходя из этого очевидно, что TeO_2 не способен эффективно передавать тепло, рассеиваемое в передних слоях, охлаждаемой металлической подложке. Из-за плохой теплопроводности вещество мишени будет перегреваться, что в конечном итоге приведет к радиационной аварии. Учитывая эти факторы, эффективное переднее охлаждение является критически важным способом улучшения теплоотвода и снижения градиента температуры в слоях мишени при облучении. Существующие в настоящее время мишенные узлы используют поток охлажденного газообразного гелия [18] или воздуха [13], однако, из-за низкой теплопроводности газовых хладагентов ($0,152 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-1} \cdot \text{К}^{-1}$ у гелия и $0,0259 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-1} \cdot \text{К}^{-1}$ у воздуха [23]) они не способны внести серьёзный вклад в процесс отвода тепла от мишени, а значит для охлаждения передней стороны мишени необходимо использовать теплоноситель с гораздо более высоким коэффициентом теплоотдачи, что и является целью данной работы.

Вторая глава посвящена разработке устройства мелкодисперсного распыления жидкости, состоящее из основных элементов (Рисунок 3):

1. ультразвуковая колебательная система (УЗКС), частотой 22 кГц .;
2. ультразвуковой генератор с автоматической подстройкой частоты (АПЧ);
3. перистальтический насос и резервуар с дистиллированной водой.

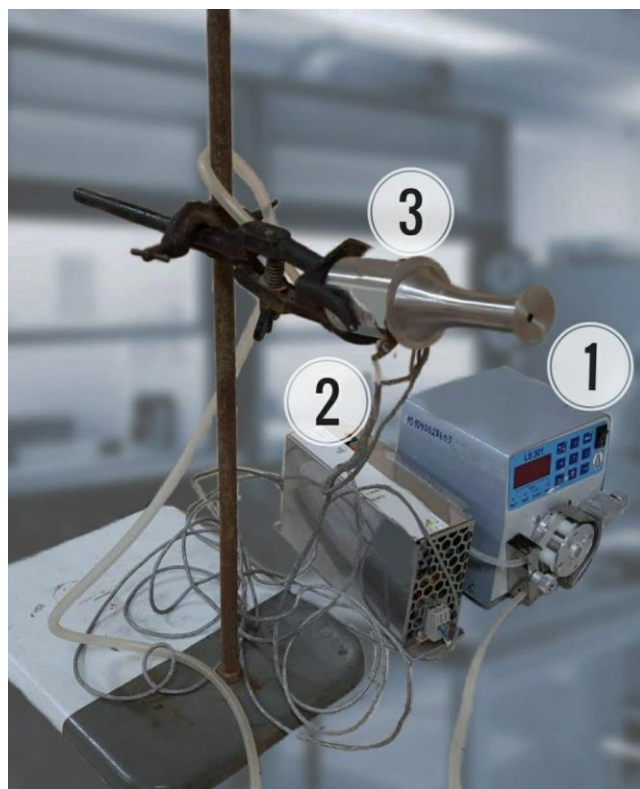


Рисунок 3 — Система мелкодисперсного распыления жидкости; (1) - перистальтический насос, (2) - УЗГ, (3) - УЗКС

Третья глава посвящена экспериментальной апробации новых подходов к охлаждению твердотельной оксидной мишени с использованием разработанной УЗКС.

Для проверки работоспособности устройства в условиях, максимально приближенных к производственным, была изготовлена мишень, состоящая из слоя TeO_2 , толщиной 0,083 мм, нанесённого на Pt подложку, толщиной 0,29 мм. Эксперименты проводились с использованием пучка дейтронов. Общая схема экспериментов, следующая: пучком циклотрона облучается твердотельная мишень, при этом поток заряженных частиц, проходя через вещество мишени, генерируя тепло, нагревает её. Передняя сторона мишени (по направлению к пучку) охлаждается потоком мелкодисперсно распылённой воды с использованием УЗКС. Основная идея разработанного способа заключается в том, что производительность распыления подбирается таким образом, чтобы вода, попадая на разогретую поверхность мишени, испарялась, охлаждая мишень за счёт энергии фазового перехода.

В первом эксперименте время облучения составляло 5 мин, максимальная мощность пучка 113 Вт. При этом пучок осаждает 19 Вт тепла в TeO_2 и затем теряет всю оставшуюся мощность в Pt.

Результаты измерений приведены в табл. 2 и на Рисунок 4. После установления теплового равновесия была проверена мишень: слой TeO_2 без внешних изменений, что говорит о работоспособности предложенного способа охлаждения потоком мелкодисперсно

распылённой воды с использованием УЗКС и принципиальной возможности его использования в производственной практике.

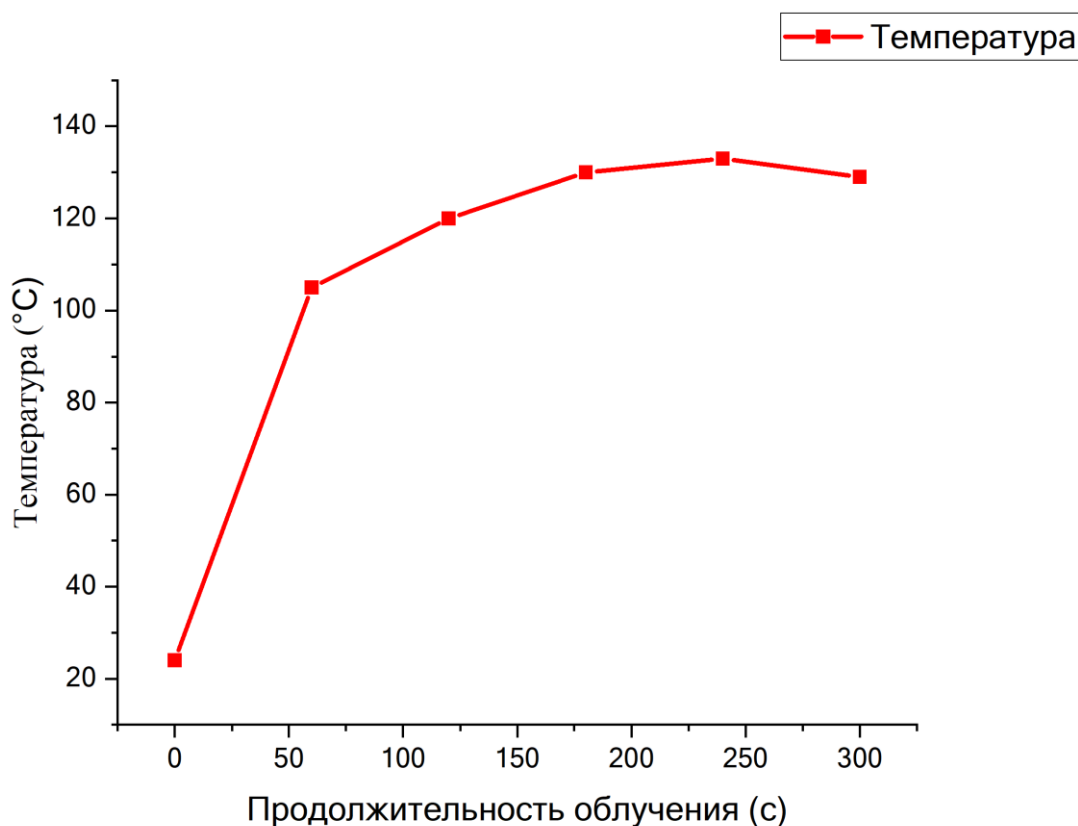


Рисунок 4 — Изменение температуры мишени TeO_2 во времени при подводимой пучком d тепловой мощности 113 Вт и охлаждении потоком мелкодисперсно распылённой воды с использованием УЗКС при расходе воды 0,25 мл/с

Таблица 2 — Результаты измерений при облучении мишени TeO_2 током 10 мкА

Продолжительность облучения, с	Температура, °C
0	$24 \pm 0,096$
60	$105 \pm 0,42$
120	$120 \pm 0,48$
180	$130 \pm 0,52$
240	$133 \pm 0,53$
300	$129 \pm 0,51$

Во втором эксперименте ток пучка был увеличен до 15 мкА, и тепловая мощность пучка составила $175,3 \pm 1$ Вт, тепловыделение в слое TeO_2 – 31 Вт, а в слое Pt – $138,5 \pm 0,3$ Вт. Параметры охлаждения остались без изменений. В табл. 3 и на Рисунок 5 представлены результаты измерений.

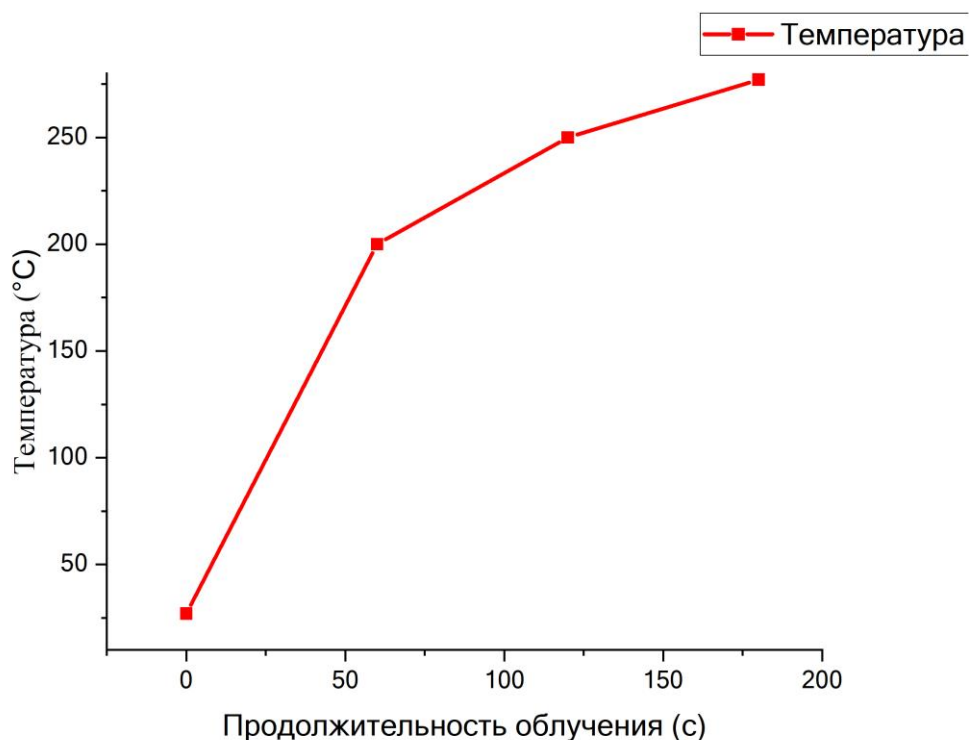


Рисунок 5 — Изменение температуры мишени TeO_2 во времени при подводимой пучком d тепловой мощности 175,3 Вт и охлаждении потоком мелкодисперсно распылённой воды с использованием УЗКС, расход воды 0,25 мл/с.

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

Продолжительность облучения, с	Температура, °C
0	$27 \pm 0,1$
60	$200 \pm 0,8$
120	$250 \pm 1,0$
180	$277 \pm 1,1$

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.

В **четвертой главе** представлены расчёты разработанных математических моделей процессов облучения и охлаждения мишени из TeO_2 для двух случаев. Первый – моделирование эксперимента по использованию мелкодисперсно распылённой воды в качестве хладогента для переднего охлаждения мишени, который был описан в главе 3. Моделирование проводилось с использованием модуля Heat Transfer in Solids and Fluids программного комплекса COMSOL Multiphysics [21]. Данный модуль позволяет моделировать процесс теплопереноса в твёрдых телах с использованием метода конечных

элементов (МКЭ). Для решения задачи была создана геометрия Pt диска с углублением, на котором расположен слой TeO_2 (Рисунок 6). При создании геометрии мишени принималось, что слой TeO_2 распределён равномерно по тиглю Pt подложки и его толщина одинаковая по всей площади.

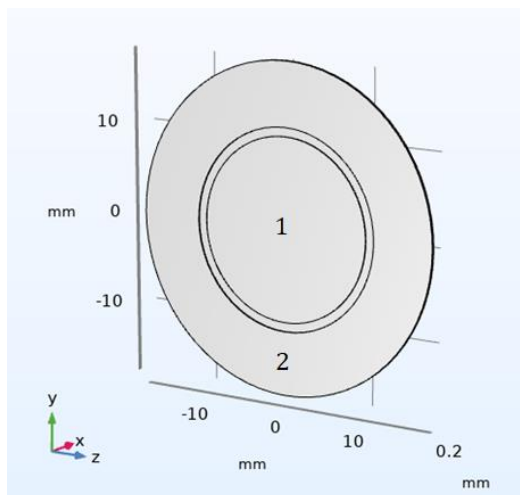


Рисунок 6 — Геометрия мишени из TeO_2 (1) на Pt подложке (2). Размеры мишени: диаметр TeO_2 - 20 мм, толщина – 0,083 мм; диаметр Pt – 36 мм, толщина Pt – 0,29 мм. Слой TeO_2 располагается в специальном тигле Pt подложки с диаметром 22 мм.

Целью разработки данной модели являлось определение интенсивности теплообмена при использовании в качестве хладагента медкодисперсного распыления воды через расчет коэффициента теплоотдачи на передней поверхности мишени. Так как коэффициент теплоотдачи может изменяться по поверхности теплообмена, то различают средний (по всей поверхности) и локальный (по единичной поверхности) коэффициент теплоотдачи. В нашем случае при решении задачи будет использоваться значение среднего по поверхности коэффициента теплоотдачи.

Модель решалась со следующими граничными условиями:

- тепловыделение в слое TeO_2 : 19 Вт;
- тепловыделение в слое Pt: 94 Вт;
- коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени: от 9 000 до 10 000 $\text{Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{К}^{-1}$;
- все остальные поверхности мишени адиабатичны.

Для определения интенсивности теплоотвода было рассчитано температурное поле при различных коэффициентах теплоотдачи на передней охлаждаемой стороне мишени (табл. 4). Из результатов видно, что значение температуры, наиболее близкое к эксперименту, рассчитывается при коэффициенте теплоотдачи равном 9 500 $\text{Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{К}^{-1}$ (131,39 °С расчётная и 129 ± 0.51 °С экспериментальная температура).

Таблица 4 — Рассчитанное значение максимальной температуры Pt в зависимости от коэффициента теплоотдачи на передней поверхности мишени

Коэффициент теплоотдачи, $\text{Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{К}^{-1}$	Температура Pt, $^{\circ}\text{C}$
9 000	136,20
9 500	131,39
10 000	127,05

Распределение температуры показано на Рисунок 7. Для коэффициента теплоотдачи 9 500 $\text{Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{К}^{-1}$ максимальная температура приходится на неохлаждаемую Pt (131,4 $^{\circ}\text{C}$), в то время как поверхность TeO_2 имеет максимальную температуру 108 $^{\circ}\text{C}$. После сравнения расчётных значений с экспериментальными данными можно предположить, что интенсивность теплоотвода на передней поверхности мишени с использованием мелкодисперсного распыления воды составляет 9 000 – 10 000 $\text{Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{К}^{-1}$.

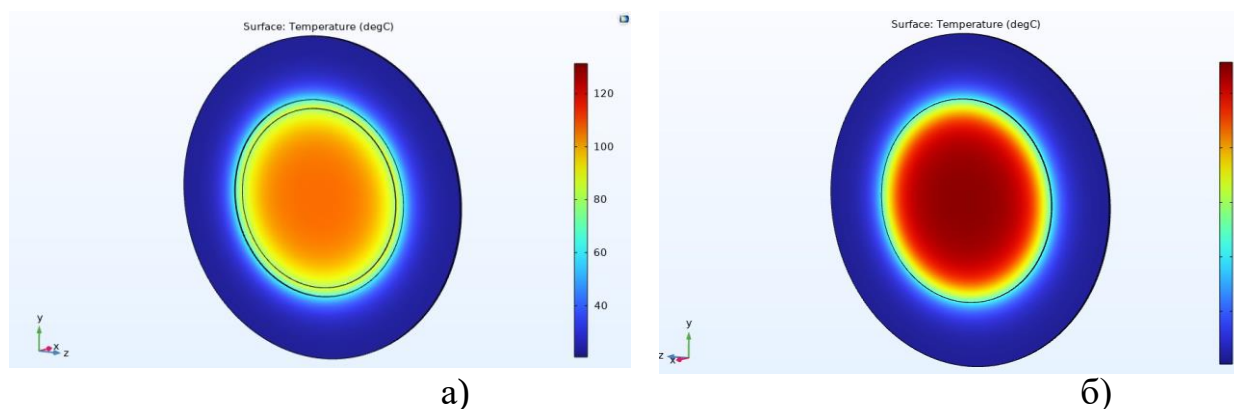


Рисунок 7 — Температурное поле мишени при интенсивности теплоотвода 9 500 $\text{Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{К}^{-1}$; а – вид спереди, б – вид сзади. Максимальная температура наблюдается в Pt подложке (Рисунок 7б).

Градиент температуры, представленный на Рисунок 8, показывает изменение температуры по толщине слоёв TeO_2 и Pt. Из-за плохих теплопроводящих свойств температура более тонкого слоя TeO_2 изменяется сильнее, чем у более толстой Pt, что ещё раз доказывает необходимость использования интенсивного переднего охлаждения двухслойной мишени.

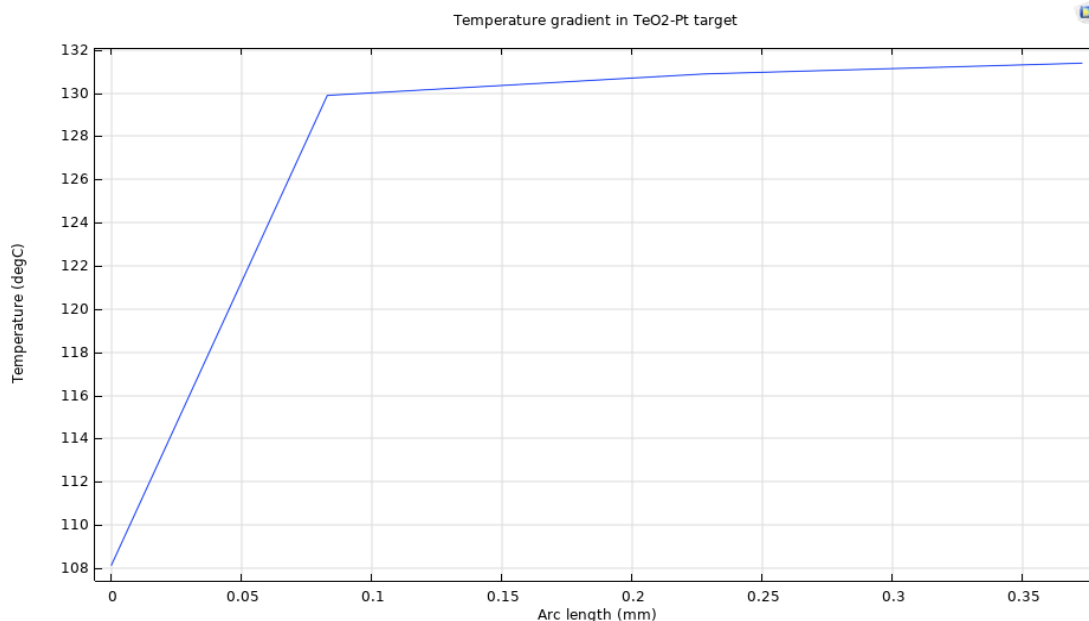


Рисунок 8 — Изменение температуры по глубине мишени для $h = 9\,500 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{К}^{-1}$.
Градиент температуры в TeO_2 (левая четверть рисунка Arc length $< 0,083 \text{ mm}$) гораздо больше, чем в Pt, что объясняется разницей в теплопроводности материалов, кратной двадцати

Второй случай – моделирование промышленного производства изотопа йод-123 на циклотроне с использованием различных теплоносителей для переднего охлаждения (воздух, гелий, вода). По результатам моделирования определялось тепловое поле облучаемой мишени и коэффициенты теплоотдачи при использовании различных хладагентов. В данном моделируемом случае конвективное охлаждение реализовано продольным омыванием водой задней части мишени (Pt подложка) и поперечным омыванием воздухом/гелием или водяным аэрозолем передней части (TeO_2). В каждом случае мишень повернута на угол 60° относительно направления пучка.

Таким образом, граничные условия следующие.

1. Переднее охлаждение – воздух/гелий:

- тепловыделение в слое TeO_2 : 160 Вт;
- тепловыделение в Pt подложке: 355 Вт;
- скорость газового теплоносителя, охлаждающего переднюю поверхность мишени (слой TeO_2): 35 м/с, 5 атм;
- скорость водяной струи, охлаждающей заднюю поверхность мишени (Pt подложка): 10 м/с.

2. Переднее охлаждение – мелкодисперсно распылённая вода:

- тепловыделение в слое TeO_2 : 177 Вт;
- тепловыделение в Pt подложке: 281 Вт;

- коэффициент теплоотдачи при охлаждении передней поверхности мишени (слой TeO_2): $9\,500 \text{ Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{°C}^{-1}$;
- скорость водяной струи, охлаждающей заднюю поверхность мишени (Рт подложка): 10 м/с.

Результаты комбинированного охлаждения воздух+вода и гелий+вода представлены в таблице 5.

Таблица 5 — Результаты моделирования для системы охлаждения газ+вода

Параметр	Воздух	Гелий
Мах температура вещества мишени, °C	139,5	137,0
Средняя температура поверхности мишени, °C	123,84	121,64
Средний коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени, $\text{Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	262,3	540,25
Средний коэффициент теплоотдачи на задней поверхности мишени, $\text{Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	23 315	23 288

Несмотря на кратно больший коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени при охлаждении гелием, по сравнению с воздухом, максимальная температура мишени отличается незначительно (137,0 против 139,5 °C). Кроме того, используя уравнение Ньютона-Рихмана можно рассчитать значение теплового потока Q , отводимого данными способами, которое равно 26,2 Вт для воздуха и 52,8 Вт для гелия. Учитывая общую тепловую мощность, рассеиваемую в мишени (544 Вт), можно отметить, что вклад газа в теплоотвод относительно невелик.

Результаты переднего охлаждения распылённой водой и заднего охлаждения струёй воды представлены в таблице 6.

Таблица 6 — Результаты моделирования для системы вода+вода

Мах температура мишени, °C	Средний коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени, $\text{Вт}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$	Средний коэффициент теплоотдачи на задней поверхности мишени, $\text{Вт}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$
92,7	9 500	22 263

Сравнительный градиент температуры в мишени при использовании нескольких способов охлаждения показан на Рисунок 9.

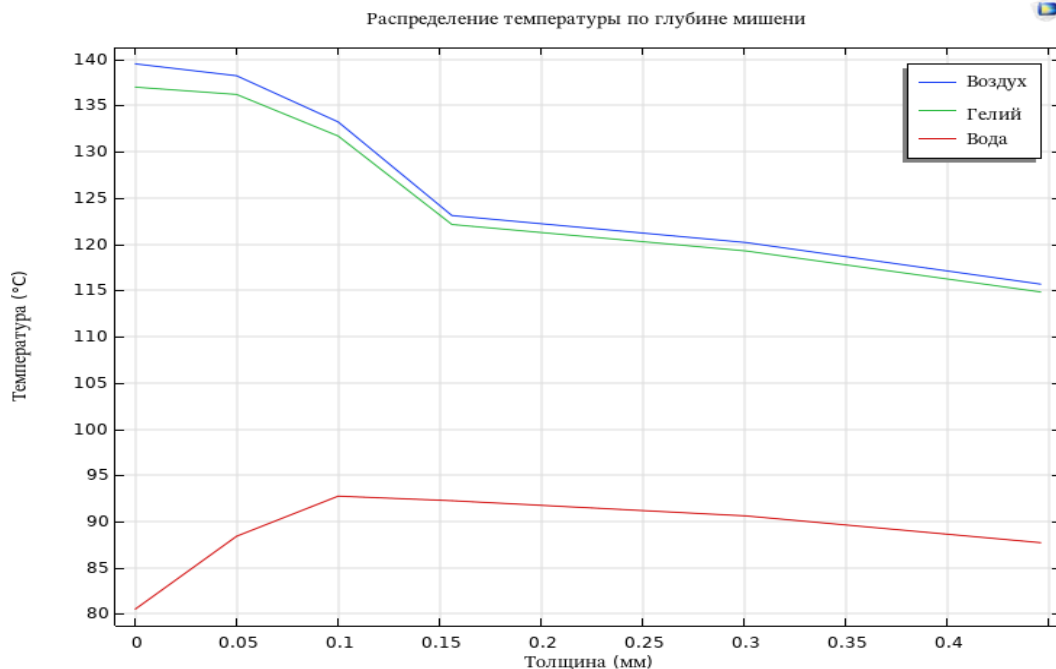


Рисунок 9 — Сравнение градиентов температур при облучении мишени из TeO_2+Pt и охлаждении различными способами. В левой четверти рисунка (толщина $< 0,156$ мм) - слой TeO_2

В **заключении** приведены основные результаты в виде формулирования следующих выводов и рекомендаций, которые могут быть полезны для разработки мишеней и мишенных устройств с перспективой их практического использования в производстве РФП на циклотроне.

1. Мишень, состоящая из оксидного материала, нанесенного на металлическую подложку, требует интенсивного переднего охлаждения, так как имеющий низкий коэффициент теплопроводности оксид плохо передает тепло охлаждаемой водой подложке.
2. При изготовлении мишени особое внимание следует уделять равномерности нанесения мишенного материала на подложку. Так как пучок заряженных частиц теряет энергию в веществе нелинейно, неровности материала приводят к повышенным удельным потерям, что способствует увеличению градиента температуры и локальному перегреву.
3. Разворот мишени на определенный угол по отношению к пучку является эффективной мерой по рассеиванию локальной плотности пучка на большей площади. При этом проекция пучка на мишени становится шире, что требует изменения формы мишени с круглой на эллипсоидную.
4. Доказана высокая эффективность охлаждения твердотельной мишени при использовании разработанного устройства мелкодисперсного распыления жидкости на основе ультразвуковой колебательной системы. Использование

- данного устройства позволяет увеличить тепловую нагрузку на мишень, без разрушения последней, до значений свыше 500 Вт.
5. Данный способ охлаждения твердотельной мишени получил патент на изобретение РФ №2777655.
 6. Доказана работоспособность физико-математической модели для исследования процессов охлаждения твердотельной мишени в процессе облучения потоком заряженных частиц.
 7. Достоверность полученных результатов подтверждается физической обоснованностью разработанной моделью теплоотвода, непротиворечивостью полученных результатов, их внутренним единством и соответствием существующим представлениям о процессах облучения и охлаждения твердотельной мишени.
 8. Результаты расчетов температурного поля твердотельной мишени в процессе облучения удовлетворительно согласуются с данными, полученными экспериментально.

Публикации автора по теме диссертации

1. Салодкин С.С., Тюрин Ю.И., Сохорева В.В. Оптимизация теплообмена в мишени из диоксида теллура при производстве радионуклидов йода на циклотроне // IV Международная конференция «Современные проблемы теплофизики и энергетики». – 21-25 октября 2024.
2. Салодкин С.С., Тюрин Ю.И., Сохорева В.В. Количественная оценка теплоотвода переднего охлаждения мишени из диоксида теллура при облучении ускоренными дейтронами // Журнал технической физики. — 2024. — Т. 94. — № 2. — С. 322-327 – пер. S.S. Salodkin, Yu.I. Tyurin, V.V. Sokhoreva. Quantitative evaluation of heat dissipation of a tellurium dioxide target front cooling during deuterons irradiation // Technical Physics. – 2024 – Vol. 69 – No. 2. – pp. 306-311. DOI: [10.61011/JTF.2024.02.57089.270-23](https://doi.org/10.61011/JTF.2024.02.57089.270-23)
3. S.S. Salodkin, V.V. Sokhoreva. A new method for cooling a solid target during iodine-123/124 production at a cyclotron // Instruments and Experimental Techniques. – 2024 – Vol. 67 – No. 2. – pp. 197–202. – DOI: <https://doi.org/10.1134/S0020441224700520>
4. Салодкин С. С. Способ охлаждения передней стороны твердотельной мишени при облучении пучком заряженных частиц: патент 2777655 Ru. — 2022.
5. Салодкин С. С., Головков В. М. Получение радионуклида Йода-124 на циклотроне // Известия вузов. Физика научный журнал: / Национальный исследовательский Томский государственный университет (ТГУ). — 2019. — Т. 62, 12 (744). — С. 171—177. – пер. Salodkin, S. S. Cyclotron Production of Iodine-124 / S. S. Salodkin, V. M. Golovkov // Russian Physics Journal. – 2020. – Vol. 62, No. 12. – P. 2347-2353. – DOI: <https://doi.org/10.1007/s11182-020-01987-8>.

6. Салодкин, Степан Сергеевич. Проблемы термической стабильности твердотельной мишени при наработке радиофармпрепаратов / С. С. Салодкин, В. М. Головков // Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине (ФТПНПМ-2019) сборник научных трудов Международной научно-практической конференции студентов, аспирантов и молодых ученых, г. Томск, 30 сентября - 04 октября 2019 г.: / Национальный исследовательский Томский политехнический университет (ТПУ) ; под ред. А. Г. Горюнова [и др.] . – 2019.
7. Салодкин С. С., Головков В. М. Получение йода-124 по реакции (d, 2n) на циклотроне Р7М для ядерной медицины // Известия вузов. Физика научный журнал: / Национальный исследовательский Томский государственный университет (ТГУ). — 2017. — Т. 60, № 9—2. — С. 102—105.
8. Головков В. М., Салодкин С. С. Исследование возможности получения нуклидов стронций-82 и йод-124 на циклотроне Р7-М ТПУ // Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий материалы конференции в рамках Научной сессии НИЯУ МИФИ. — 2016.
9. Салодкин С. С., Головков В. М. Оценка возможности получения стронция-82 и йода-124 на циклотроне Р7-М // VI Школа-конференция молодых атомщиков Сибири. — 2015.
10. Салодкин, Степан Сергеевич. Получение йода-124 на циклотроне ТПУ для ядерной медицины / С. С. Салодкин, В. М. Головков // VII Школа-конференция молодых атомщиков Сибири сборник тезисов докладов, 19-21 октября 2016 г., г. Северск: / Росатом [и др.]. – 2016.

Список литературы

1. S.S. Salodkin, V.V. Sokhoreva. A new method for cooling a solid target during iodine-123/124 production at a cyclotron // Instruments and Experimental Techniques. – 2024 – Vol. 67 – No. 2. – pp. 197–202. – DOI: <https://doi.org/10.1134/S0020441224700520>
2. Забаев В. Н. Применение ускорителей в науке и промышленности: Учебное пособие. — Томск : Изд-во ТПУ, 2008. — 190 с.
3. Радиофармацевтические лекарственные препараты / Государственная фармакопея Российской Федерации XV издания. — ОФС.1.11.0001. — 2023. — Утверждена приказом Минздрава России от 20.07.2023 № 377.
4. Денисова И. В. Ядерная диагностика: увидеть невидимое // Наука из первых рук. — 2018. — Т. 62, 5—6 (80). — С. 92—99.
5. Alternative radionuclide production with a cyclotron: tech. rep. / International Atomic Energy Agency. — Vienna, 2021. — 84 p.
6. Nuclear data for the production of therapeutic radionuclide: tech. rep. / International

Atomic Energy Agency. — Vienna, 2011. — No. 473.

7. *Скуридин В.М.* Разработка технологий получения короткоживущих радионуклидов и диагностических препаратов на их основе с использованием излучательных установок средней мощности: диссертация на соискание ученой степени доктора технических наук: спец. 05.17.02. — Томский политехнический университет (ТПУ), Томск., 2002. — 203 с.
8. Production of curie quantities of high purity ^{123}I with 15 MeV protons / L. Barral [et al.] // Eur. J. Nucl. Med. — 1981. — Vol. 6. — P. 411.
9. Standardized high current solid targets for cyclotron production of diagnostic and therapeutic radionuclides: tech. rep. / International Atomic Energy Agency. — Vienna, 2004. — No. 432.
10. *Solin L. M., Kudelin B. K., Jakovlev V. A.* Some aspects on tellurium targets for iodine-123 production // Proceedings of the 9th International Workshop on Targetry and Target Chemistry. — Turku, Finland, 23-25 May 2002.
11. *Alekseev I. E., Darmograi V. V., Marchenkov N. S.* Development of Diffusion-Thermal Methods for Preparing ^{67}Cu and ^{124}I for Radionuclide Therapy and Positron Emission Tomography // Radiochemistry. — 2005. — Vol. 47. — P. 502–509. — DOI: <https://doi.org/10.1007/s11137-005-0129-z>.
12. Циклотрон в решении научных и практических задач. Сб. статей / под ред. В. М. Головкова. — Томск: Изд-во ТПУ, 1999. — 103 с.
13. *Комов А. И.* Устройство облучения мишени / НИИ ЯФ при ТПУ. — 1-е изд. — Томск, 2007. — Эксплуатационная документация лаборатории получения радиоактивных веществ.
14. Production, quality control of next-generation PET radioisotope iodine-124 and its thyroid imaging / W. Feng [et al.] // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. — 2018. — Vol. 318. — P. 1999–2006. — DOI: <https://doi.org/10.1007/s10967-018-6277-3>.
15. Low energy cyclotron production and chemical separation of «no carrier added» iodine-124 from a reusable, enriched tellurium-124 dioxide/aluminum oxide solid solution target / Y. Sheh [et al.] // Radiochimica Acta. — 2000. — Vol. 88. — P. 169–174. — DOI: <https://doi.org/10.1524/ract.2000.88.3-4.169>.
16. *Nye J. A., Avila-Rodriguez A. M., Nickles R. J.* Production of [^{124}I]-iodine on an 11 MeV cyclotron // Radiochim. Acta. — 2006. — Vol. 94. — P. 213–216. — DOI: <https://doi.org/10.1524/ract.2006.94.4.213>.
17. Modeling of thermal properties of a TeO_2 target for radioiodine production / J. Comor [et al.] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. — 2004. — Vol. 521,

- no. 1. — P. 161–170. — DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2003.11.147>.
18. Nirta Solid Compact Model TS06 / ELEX Commerce. — Belgrade, Serbia, 2010.
 19. Салодкин С. С. Способ охлаждения передней стороны твердотельной мишени при облучении пучком заряженных частиц: патент 2777655 Ru. — 2022.
 20. Хмелев В. Н., Шалунов А. В., Шалунова А. В. Ультразвуковое распыление жидкостей: монография. — Бийск: Изд-во Алт. гос. техн. ун-та, 2010. — 250 с.
 21. Введение в COMSOL Multiphysics / COMSOL. — США, 1998–2018.
 22. Скуридин В. С. Методы и технологии получения радиофармпрепаратов: учебное пособие. — Томск: Изд-во ТПУ, 2012. — 139 с.
 23. Варгафтик Н. Б. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. — М.: Издательство "Наука", 1972. — 720 с.