Министерство науки и высшего образования Российской Федерации Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования



«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»

На правах рукописи

Салодкин Степан Сергеевич

ПЕРЕДНЕЕ ОХЛАЖДЕНИЕ ТВЕРДОТЕЛЬНОЙ МИШЕНИ ПРИ ПРОИЗВОДСТВЕ РАДИОНУКЛИДОВ ЙОДА НА ЦИКЛОТРОНЕ

1.3.14 — «Теплофизика и теоретическая теплотехника»

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание учёной степени

кандидата технических наук

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор

Тюрин Юрий Иванович

Томск — 2024

Оглавление

				Стр.
введ	EH	ИЕ		6
ГЛАВ	A 1	l. TEX	НОЛОГИЧЕСКИЙ ЦИКЛ ПРОИЗВОДСТВА	
		PA	ІИОФАРМПРЕПАРАТОВ НА ОСНОВЕ ЙОДА НА	
		ЦИ	КЛОТРОНЕ	
1.	1	Радио	фармпрепараты на основе йода. Литературный обзор.	
		Поста	новка задачи	
1.	2	Парам	иетры производства изотопов на ускорителях	
1.	3	Взаим	юдействие заряженных частиц с веществом	
1.4	4	Типы	циклотронных мишеней	
		1.4.1	Металлический теллур	
		1.4.2	Диоксид теллура	
1.:	5	Терми	ическая стабильность оксидной мишени при облучении	
		пучко	м заряженных частиц	
		1.5.1	Механизмы разрушения мишени при облучении пучком	
			заряженных частиц	
		1.5.2	Оптимизация режима облучения	
		1.5.3	Оптимизация режима охлаждения	
1.	6	Вывод	цы по главе 1. Постановка задачи исследования	
ГЛА	BA	2. УС	ТРОЙСТВО ОХЛАЖДЕНИЯ ТВЕРДОТЕЛЬНОЙ	
		МИ	ШЕНИ НА ОСНОВЕ МЕЛКОДИСПЕРСНОГО	
		PAC	СПЫЛЕНИЯ ЖИДКОСТИ И ЕГО	
		ПЫ	ИМЕНЕНИЕ НА ЦИКЛОТРОНЕ	
2.	1	Ультр	азвуковая колебательная система	
2.2	2	Ультр	азвуковой генератор	61

2.3	3 Дисперсный состав водяного потока, создаваемого
	ультразвуковым излучением63
2.4	4 Выводы по главе 2 65
ГЛАВ	А 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ АПРОБАЦИЯ НОВЫХ ПОДХОДОВ К
	ОХЛАЖДЕНИЮ ТВЕРДОТЕЛЬНОЙ ОКСИДНОЙ МИШЕНИ 66
3.	Облучение и охлаждение мишени из TeO ₂ в производственном
	режиме циклотрона67
3.2	2 Выводы по главе 3
ГЛАІ	ВА 4. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ПРОЦЕССОВ
	ОХЛАЖДЕНИЯ ОБЛУЧАЕМОЙ МИШЕНИ С
	ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ПЕРЕДНЕГО И ЗАДНЕГО
	ТЕПЛООТВОДА С ПОМОЩЬЮ ПАКЕТА
	МОДЕЛИРОВАНИЯ COMSOL MULTIPHYSICS 73
4.	Количественная оценка теплоотвода переднего охлаждения
	мишени из диоксида теллура73
4.2	2 Исследование режимов охлаждения оксидной мишени при
	производстве изотопов йода
4.	3 Применение технологии охлаждения передней стороны для
	мишеней с низкими теплопроводящими свойствами
4.4	4 Выводы по главе 4
ЗАКЈ	ІЮЧЕНИЕ
БЛАІ	ГОДАРНОСТИ
СПИ	С ОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ 100
СПИ	С ОК ЛИТЕРАТУРЫ 101

Введение

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 мелкодисперсного распыления жидкости на основе ультразвуковой колебательной системы для охлаждения передней стороны мишени [1].

Радионуклиды (PH) 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 PH, 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 находят широкое применение в ядерной медицине, главным образом в форме радиофармацевтических лекарственных препаратов (РФЛП), которые используются как для ранней диагностики патологий различных органов человека, так и для терапевтических целей. Радиофармацевтический препарат представляет собой лекарственное средство, содержащее один или несколько радионуклидов (радиоактивных изотопов) в готовом к применению виде в качестве активного компонента или его части. [3].

Современные диагностические подходы в ядерной медицине включают такие технологии, как позитронно-эмиссионная томография (ПЭТ) и однофотонная В томография (ОФЭКТ). эмиссионная компьютерная диагностических радиофармацевтических препаратах (РФЛП) используются радионуклиды, испускающие гамма- или позитронное излучение, которые выступают в роли информационных маркеров. Излучение, исходящее от радионуклидов, проникает через ткани организма и фиксируется внешними детекторами. РФЛП могут

накапливаться как в здоровых, так и в патологически измененных тканях, что позволяет не только визуализировать анатомические структуры, как в традиционной томографии, но и оценивать метаболические процессы на клеточном уровне. Эти методы находят широкое применение в клинической практике. Позитронноэмиссионная томография считается «золотым стандартом» в диагностике онкологических заболеваний, так как позволяет выявлять первичные опухоли на самых ранних стадиях и проводить сканирование всего организма для обнаружения возможных метастазов. Такие возможности крайне важны для разработки лечебной стратегии и ранней оценки эффективности терапии [4].

Радионуклиды йода активно применяются в ядерной медицине как для диагностических целей с использованием методов ПЭТ и ОФЭКТ [5], так и в брахитерапии [6]. Производство изотопов йода осуществляется на медицинских циклотронах посредством облучения твердотельных мишеней ускоренными пучками протонов или дейтронов [5; 7].

Одним из наиболее часто используемых материалов для мишеней при производстве радиойода является обогащённый по определённому изотопу теллур, который применяется в виде металлического теллура или 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 TeO₂, обогащённого по определённому изотопу и нанесённого на подложку из тугоплавкого материала (Pt, Ta) [10; 11]. Температура плавления TeO₂ (733°C) выше, чем у металла, однако его теплопроводность достаточно низкая (З Вт/м·К), что затрудняет процесс передачи тепла от вещества мишени к охлаждаемой подложке при облучении высоким током пучка. Таким образом, для повышения интенсивности производства радионуклидов необходимо обеспечить дополнительное охлаждение мишени.

В связи с этим, с одной стороны, рабочий слой мишенного материала должен быть минимальным, чтобы обеспечить эффективное отведение тепла, а с другой стороны, количественный выход радионуклида должен быть сопоставим с выходом, достигаемым при использовании «толстой» мишени [12]. Кроме того, при

производстве радиоизотопов на циклотроне стремятся применять максимально возможный ток пучка заряженных частиц, чтобы достичь наибольшей активности целевого нуклида. Энергия, теряемая заряженными частицами при их торможении в материале мишени, выделяется 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 негативно сказывается на экономических показателях производства радионуклидов. Проблему значительного радиационного нагрева можно решить путем применения принудительного охлаждения мишени. Это позволит сохранить высокую плотность тока заряженных частиц, одновременно предотвращая фазовые превращения материала за счет эффективного теплоотвода.

Степень разработанности темы исследования. В научной литературе описаны два метода охлаждения мишени во время облучения. В первом методе задняя поверхность мишени охлаждается проточной водой, а передняя – потоком воздуха [7; 13]; во втором — задняя поверхность также охлаждается водой, а передняя — потоком гелия [14—16]. Несмотря на достигнутые успехи при использовании этих методов, отводимая от мишени мощность во время облучения остаётся на низком уровне, составляя значения около 350-500 Вт [17; 18], что не соответствует возможностям рабочего тока пучка современных циклотронов.

Сам по себе TeO₂ является плохо изученным материалом с точки зрения физико-химических и теплофизических 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 выступают процессы охлаждения твердотельной мишени при её облучении потоком заряженных частиц, а предметом исследования является охлаждение мишени с использованием потока

мелкодисперсно распылённой жидкости.

Целью работы является разработка нового метода охлаждения твердотельной мишени при производстве радионуклидов йода на циклотроне для применения в ядерной медицине. Для достижения этой цели необходимо было решить следующие решить следующие задачи:

- Разработка устройства мелкодисперсного распыления жидкости на основе ультразвуковой колебательной системы для охлаждения передней стороны мишени;
- Создание физико-математической модели 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 сопряжённого теплообмена.

Впервые произведено охлаждение твердотельной мишени из TeO₂ 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 TeO₂. 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:

- Разработано устройство для охлаждения твердотельной мишени с использованием потока мелкодисперсно распылённой воды при производстве радионуклидов на циклотроне.
- Исследовано тепловое поле мишени при воздействии пучка заряженных частиц тепловой мощностью 500-800 Вт и дополнительным охлаждением передней стороны мишени мелкодисперсно распылённой водой.
- Получены новые данные о кинетике охлаждения передней стороны мишени мелкодисперсно распылённой водой.
- 4. Выработаны критерии работоспособности мишени при различной мощности тепловой нагрузки
- 5. Экспериментально проверены характеристики тепловых полей при облучении и охлаждении оксидной мишени.
- 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 распылённой жидкости собиралась по технологическим приведённым [20], контроль производительности схемам, В 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:

- Экспериментально доказана высокая эффективность охлаждения твердотельной мишени при использовании разработанного и изготовленного устройства мелкодисперсного распыления жидкости на основе ультразвуковой колебательной системы.
- Практически обоснована физико-математическая модель для исследования процессов охлаждения твердотельной мишени при облучении потоком заряженных частиц.
- Доказана работоспособность предложенного способа охлаждения твердотельной мишени при облучении потоком заряженных частиц при реализации технологии производства радионуклидов йода на циклотроне.
- 4. Разработаны и даны рекомендации применения результатов численного моделирования теплообмена и критериев разрушения TeO₂, при выборе режимов охлаждения оксидной мишени для производства изотопов йода путём её облучения на циклотроне.

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 расчётов погрешностей измерений зарегистрированных физических величин.

Для подтверждения достоверности результатов математического моделирования был проведён сравнительный анализ с данными экспериментов, полученными в рамках данного исследования. Результаты расчётов температурного поля твердотельной мишени в процессе облучения хорошо 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. Проведён научно-информационный поиск и анализ состояния проблемы. Разработана математическая модель процессов облучения твердотельной мишени пучком заряженных частиц и её охлаждения потоком мелкодисперсно распылённой воды. Разработано и экспериментально апробировано устройство охлаждения мишени, в основе которого лежит ультразвуковая колебательная система, проведён 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. Основные положения диссертационной работы представлены в докладах на VI Школе-конференции молодых атомщиков Сибири,-Томск, 2015; конференции "Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий материалы конференции в рамках Научной сессии НИЯУ МИФИ - Северск, 2016; VII Школе-конференции молодых атомщиков,- 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 базах данных, индексируемых Scopus и WoS, 5 — в тезисах докладов.

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, четырёх глав, заключения и четырёх приложений. Полный объём диссертации составляет 118 страниц с 42 рисунками и 17 таблицами. Список литературы содержит 103 наименования.

Содержание работы.

Во введении обоснована актуальность темы диссертационной работы, сформулированы цель и задачи исследований, а также практическая и теоретическая

значимость работы, научная новизна и достоверность результатов, личный вклад автора.

В первой главе приведено описание свойств основных изотопов йода, типы циклотронных мишеней, основные параметры облучения и способы обеспечения термической стабильности твердотельных мишеней.

В ядерной медицине повсеместно используются изотопы йода, полученные ускорительным способом: ¹²⁰gI, ¹²³I, ¹²⁴I, ¹²⁵I. Данные радионуклиды используют как в диагностике, так и в терапии, их производят на ускорителях заряженных частиц при облучении твердотельной мишени пучком высокоэнергетических протонов или дейтронов. При прохождении заряженной частицы через вещество частица теряет энергию за счёт ионизационного торможения, что приводит к генерации тепла и нагреву мишени. Мощность пучка, диссипированная в мишени, равна току пучка в микроамперах, умноженному на энергию в МэВ.

В качестве материала мишени для производства радиойода используется диоксид теллура, обогащённый по определенному изотопу и нанесённый на подложку из тугоплавкого материала (чаще всего Pt). Такая мишень позволяет выделять любой радионуклид йода без её разрушения методом термодиффузии в области температур фазового перехода плавления TeO₂. Однако тепловые и прочностные свойства оксидных материалов заметно отличаются от свойств металлов, что сказывается на термической устойчивости мишеней к длительному и интенсивному облучению. Особенности тепловыделения в веществе мишени при облучении, в сочетании с низкой теплопроводностью диоксида теллура, приводят к образованию «горячих точек» — зон локального перегрева материала мишени, что может привести к её разрушению.

Для обеспечения термической стабильности оксидной мишени во время облучения используют различные способы, такие как применение более равномерного профиля пучка, наклон мишени на определенный угол по отношению к пучку, уменьшение толщины слоя оксидного материала и эффективное переднее охлаждение мишени. При этом именно переднее охлаждение обеспечивает достаточный теплоотвод, так как из-за плохих термопроводящих свойств TeO₂, тепло, поглощаемое в целевом слое, не может эффективно передаваться охлаждаемой подложке.

Несмотря на попытки реализации переднего охлаждения с использованием газовых теплоносителей, их эффективность остаётся довольно низкой, и для интенсивного охлаждения передней стороны мишени нужно использовать теплоноситель с гораздо более высоким коэффициентом теплоотдачи, например, мелкодисперсно распылённую воду. Для реализации данного способа охлаждения необходимо разработать устройство переднего охлаждения мишени на основе ультразвуковой колебательной системы, провести экспериментальную проверку работоспособности указанного метода, а также оценить эффективность переднего охлаждения с использованием средств математического моделирования.

Во второй главе приведены результаты расчёта и конструирования устройства переднего охлаждения мишени, которое состоит из ультразвуковой колебательной системы (УЗКС), частотой 22 кГц, ультразвукового генератора и перистальтического насоса. Вода, попадая на рабочую поверхность УЗКС распыляется, образуя факел из мелкодисперсных водяных частиц.

Основным преимуществом ультразвукового метода распыления является возможность изменения толщины слоя воды на поверхности мишени до минимально целесообразного (0,1-0,2 мм), что позволяет с одной стороны, интенсифицировать теплообмен за счёт водяного охлаждения, с другой снизить потери энергии пучка при прохождении слоя жидкости, что является важным фактором при наработке больших активностей радионуклида.

В третьей главе проведена экспериментальная апробация разработанного устройства охлаждения мишени на пучке дейтронов циклотрона Р7М. Мишень из TeO₂, нанесённого на подложку из Pt облучалась пучком дейтронов с энергией 13,6 МэВ и током 10 мкА. Охлаждение осуществлялось потоком мелкодисперсно распылённой воды с передней стороны мишени (по отношению к пучку). Во время облучения температура Pt подложки измерялась термопарой, после облучения визуально проверялась целостность мишени.

Эксперименты доказали работоспособность и высокую эффективность

охлаждения твердотельной мишени при использовании разработанного устройства мелкодисперсного распыления жидкости. Использование только лишь переднего охлаждения позволило мишени из диоксида теллура сохранять работоспособность 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 °C, что гарантировало целостность оксидного слоя.

Четвертая глава содержит расчёты разработанных математических моделей процессов облучения и охлаждения мишени из TeO₂ для двух случаев. Первый – моделирование эксперимента по использованию мелкодисперсно распылённой воды в качестве хладогента для переднего охлаждения мишени, который был описан в главе 3. В данном исследовании определён коэффициент теплоотдачи при охлаждении передней стороны мишени потоком мелкодисперсно распылённой воды. Вторая модель заключается в моделирование промышленного производства изотопа йод-123 на циклотроне с использованием различных теплоносителей для охлаждения передней поверхности мишени (воздух, гелий, вода). В результате были рассчитаны тепловое поле облучаемой мишени и коэффициенты теплоотдачи для каждого из теплоносителей. Установлено, что интенсивность теплоотвода при использовании распылённого водяного потока для охлаждения передней стороны мишени на порядок выше, чем при использовании газового теплоносителя.

В заключении кратко сформулированы основные результаты диссертационной работы.

К диссертационной работе приложен патент на изобретение способа охлаждения передней стороны твердотельной мишени при облучении пучком заряженных частиц (приложение Г).

Глава 1. Технологический цикл производства радиофармпрепаратов на основе йода на циклотроне.

В современной медицинской практике используются сразу несколько изотопов йода, отличающиеся ядерно-физическими свойствами и, как следствие, [22]. Одним ИЗ достоинств применения РФЛП применением на основе радиоактивного йода является тот факт, что диагностика заболеваний с помощью препаратов, меченных одним изотопом йода, может быть совмещена с последующей терапией с использованием аналогичных РФЛП на основе другого изотопа йода [23]. В России развитие производств радионуклидов йода сдерживается отсутствием стандартизованных методик синтеза большинства высокоинформативных РФЛП, производимых за рубежом. В данной главе рассмотрены и обобщены работы, посвящённые методам производства изотопов йода на циклотроне, основным проблемам, связанным с облучением оксидных мишеней токами пучка высокой интенсивности.

1.1 Радиофармпрепараты на основе йода. Литературный обзор. Постановка задачи

В радиофармпрепараты широко настоящее время используются В заболеваний. Различают 2 медицинской визуализации различных вида однофотонная радионуклидной диагностики: эмиссионная компьютерная томография (ОФЭКТ) и позитронная эмиссионная томография (ПЭТ). Первый вид диагностики позволяет получать изображения при введении в организм РФЛП, меченные γ-излучающими нуклидами (I-123, Tc-99m, Tl-199), а второй – изображения при использовании позитрон-излучающих радионуклидов (F-18, C-11, I-124) [24]. При этом для ПЭТ характерна радиационная конверсия излучения, т.е. детектор регистрирует фотоны, возникающие в результате аннигиляции испускаемых из РФЛП позитронов со свободными электронами в тканях организма. В ОФЭКТ

регистрируются γ-кванты, испускаемые непосредственно из РФЛП.

К РФЛП, используемым в радионуклидной диагностике, предъявляются следующие требования [25]:

 Минимизация радиационной нагрузки на пациента. На радиационную безопасность конкретного РФЛП, влияют такие факторы как период полураспада нуклида (Т_{1/2}) и время биологического полувыведения РФЛП из организма (Тб). Эти параметры комбинируются в показатель эффективного периода полураспада (Тэфф), который отражает скорость убывания активности препарата:

$$T_{9\phi\phi} = \frac{T_{1/2} \cdot T_6}{T_{1/2} + T_6}.$$
 (1.1)

В ядерной медицине оптимальным с точки зрения радиационной безопасности является использование короткоживущих γ-излучающих изотопов. Важно отметить, что радиационная нагрузка на организм пациента определяется не только общей экспозиционной дозой, но и тем, насколько сильно ионизирующее излучение воздействует на критические органы-мишени, а также типом и энергией распада конкретного радионуклида.

- Безопасность для больного в химическом отношении как самого РФЛП, так и продуктов его биотрансформации в организме.
- Соответствие излучения, образующегося при распаде радионуклида, входящего в состав РФЛП, требованиям регистрации с использованием радиодиагностической аппаратуры.
- 4. Пригодность РФЛП для решения определённых клинико-диагностических задач, обусловленная его кинетикой в организме.

В ядерной медицине наиболее часто применяются изотопы йода, полученные с использованием ускорителей: ^{120g}I, ¹²³I, ¹²⁴I, ¹²⁵I. Данные радионуклиды производят на ускорителях заряженных частиц при облучении пучком высокоэнергетических (13-30 МэВ) протонов или дейтронов. Ввиду большей распространённости малых и средних медицинских ускорителей, реакции на протонах используются заметно чаще.

Технологический цикл, в общем случае, включает в себя следующие стадии (рис. 1.1):

- изготовление мишени;
- облучение мишени на ускорителе заряженных частиц;
- выделение радионуклида;
- мечение субстанции РФЛП радиоактивным йодом.



Рисунок 1.1 — Общая схема получения циклотронных радионуклидов и их РФЛП [26]

Йод-120. Ультракороткоживущий β^+ эмиттер с периодом полураспада 1,35 ч, представляющий большой потенциальный интерес для количественной оценки биораспределения радиофармпрепаратов, меченных ¹²³I и используемых в однофотонной эмиссионной компьютерной томографии (ОФЭКТ). ПЭТ-фантомные измерения показали, что, несмотря на высокую энергию позитронов в конечной

точке, радионуклид ^{120g}I вполне пригоден для ПЭТ-исследований на людях [27].

I-120g можно получить на медицинском циклотроне через реакцию 120 Te(p,n) 120 I с энергией протонов 15-18 МэВ. При этом, из-за дороговизны стартового материала мишени 120 TeO₂ общая масса мишенного вещества составляет около 30 мг (на площади около 0,5 см²). Таким образом, мишень получается довольно тонкой, а значит, и ожидаемый выход 120 gI невелик. Зависимость функции возбуждения и выхода реакции 120 Te(p,n) 120 I показана на рис. 1.2.



Рисунок 1.2 — Зависимость сечения (а) и выхода реакции ¹²⁰Te(p,n)¹²⁰I (б) от энергии протонов [28]

Йод-123. Короткоживущий (T_{1/2} = 13,2 ч) γ-эмиттер с основной линией 159 кэВ, благодаря которой является одним из наиболее удобных радионуклидов для однофотонной эмиссионной компьютерной томографии (ОФЭКТ), взамен более

радиационно опасного ¹³¹І.

По способу получения реакции делятся на косвенные (генераторные) и прямые. Косвенные включают в себя облучение газа Xe-124 [29], где по реакциям 124 Xe(p,2n) 123 Cs $\rightarrow ^{123}$ I и 124 Xe(p,pn) 123 Xe $\rightarrow ^{123}$ I, через образование промежуточных ядер нарабатывается 123 I высокой радионуклидной чистоты. Однако, данный способ требует использования протонов с энергией > 20 МэВ, что недоступно для большинства медицинских ускорителей.

На ускорителях низких и средних энергий реализуется прямая реакция на протонах

123
Te(p,n) 123 I (1.2)

или дейтронах (рис. 1.3)

122
Te(d,n) 123 I (1.3)

Теоретический выход реакции (1.2) составляет 271 МБк/мкА·ч [28] при энергии протонов 15 МэВ, она используется на малых циклотронах типа МГЦ-20, Cyclone 18/9. Материал мишени также является довольно дорогостоящим, так как содержание изотопа ¹²³Те в природном теллуре составляет всего 0,89 % [30]. Несмотря на это, из-за большой распространённости протонных циклотронов, данная реакция достаточно хорошо освоена, например её используют в НПО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина» [15; 31—33].

По реакции (1.3) производится наработка I-123 на базе циклотрона Р7М ТПУ с практическим выходом порядка 18,5 МБк/мкА·ч при начальной энергии дейтронов 13,6 МэВ [34]. Данный способ позволяет получать достаточно чистый I-123, так как сопутствующая реакция ¹²²Te(d,2n)¹²²I, хотя и имеет довольно большое сечение, но производит ультракороткоживущий ($T_{1/2} = 3,63$ мин) изотоп. Кроме того, исходное вещество мишени заметно более распространено (2,6% против 0,89% [30]) Специалисты Научной лаборатории радиоактивных веществ и технологий Томского политехнического университета отработали синтез нескольких РФЛП на основе I-123, таких как "О-йодгиппурат", "Йодофен", "Метайодбензилгуанидин", "Жирная кислота".



Рисунок 1.3 — Зависимость сечения реакции ¹²³Te(p,n)¹²³I (а) и ¹²²Te(d,n)¹²³I (б) от энергии заряженных частиц [28; 35]

Йод-124. Относительно долгоживущий β^+ активный радионуклид, применяемый для диагностики методом позитрон-эмиссионной томографии, а также для терапии. Период полураспада составляет 4,176 сут, при распаде с вероятностью около 22,7% излучаются позитроны с энергией до 2 138 кэВ и γ-кванты с энергиями до 2 988 кэВ, наиболее интенсивная линия (63% распадов) 602,7 кэВ.

Радионуклид ¹²⁴I обладает широким спектром применений в диагностике, включая визуализацию щитовидной и паращитовидной желез, функциональные исследования рецепторов нейромедиаторов, а также выявление онкологических опухолей с помощью меченых моноклональных антител. РФЛП содержащие метайодбензилгуанидин, жирные кислоты и фибриноген, меченные ¹²⁴I, позволяют проводить исследования головного мозга и сердца. Благодаря длительному периоду полураспада ¹²⁴I используется в ПЭТ-исследованиях для иммунологических целей.

Дополнительно, из-за испускания Оже-электронов, 124I может применяться в качестве терапевтического агента [6; 36; 37].

Промышленное получение ¹²⁴I возможно с использованием ускоренных протонов

124
Te(p,n)¹²⁴I (1.4)

или дейтронов (рис. 1.4)

124
Te(d,2n) 124 I (1.5)



Рисунок 1.4 — Зависимость сечения реакции ¹²⁴Te(p,n)¹²⁴I (a) и ¹²⁴Te (d,2n)¹²⁴I (б) от энергии заряженных частиц [28]

При использовании протонов, помимо целевой реакции (1.4) возникает конкурирующая реакция ¹²⁴Te(p,2n) ¹²³I, с порогом около 11 МэВ и пиком в районе 22–24 МэВ. Возможно снижение энергии протонов ниже 11 МэВ, однако это приводит к заметному снижению выхода ¹²⁴I. Поэтому чаще всего применяют

выдержку мишени в течение примерно двух суток для уменьшения содержания 123 I ($T_{1/2} = 13,2$ ч), до приемлемого уровня [38].

В реакции на дейтронах возможно получение значительных активностей ¹²⁴I, при этом сопутствующая реакция ¹²⁴Te(d,n)¹²⁵I имеет заметно меньшее сечение, благодаря чему активность долгоживущей примеси I-125 оказывается сравнительно небольшой (1,7%) [38]. Однако, нарабатываемый по реакции ¹²⁴Te(d,n)¹²⁵I имеет длительный период полураспада ($T_{1/2} = 59,4$ сут) и, несмотря на распад с испусканием низкоэнергетичных γ -квантов и Оже-электронов будет оказывать радиационное воздействие на пациента долгое время после распада и вывода всего ¹²⁴I. Несмотря на это, реакция на дейтронах обладает некоторыми преимуществами, такими как более высокие выход и ток пучка при использовании дейтронных ускорителей. На циклотроне Р7М ТПУ был проведён эксперимент [39] по наработке ¹²⁴I на пучке дейтронов, который показал принципиальную возможность использования данной реакции.

Йод-125. Долгоживущий радионуклид ($T_{1/2} = 59,39$ сут.), испускающий низкоэнергетичное γ -излучение (6,63%, 35,5 кэВ), а также рентгеновское излучение и Оже-электроны, применяется в терапии рака предстательной железы [40], и в качестве трассера для различных биологических и медицинских исследований[41].

Изотоп ¹²⁵І эффективно нарабатывается с использованием реакции с порогом 10,1 МэВ (рис. 1.5):

$$^{126}\text{Te}(p,2n)^{125}\text{I}$$
 (1.6)

Данная реакция имеет довольно большое сечение (1045 мб при энергии протонов 17,6 МэВ) в результате чего за 24 ч облучения возможно наработать 113,55 ГБк ¹²⁵I [42]. Однако, из-за конкурирующей реакции ¹²⁶Te(p,n)¹²⁶I целевой нуклид будет загрязнён долгоживущим β^+ и β^- эмиттером ¹²⁶I.



Рисунок 1.5 — Зависимость сечения реакции ¹²⁶Te(p,2n)¹²⁵I от энергии протонов [42]

Рассмотренные изотопы йода (табл. 1) имеют в своей основе одинаковые методы производства, отличающиеся только стартовым изотопом Те в веществе мишени. В результате, возможно применение "унифицированного" технического решения, включающего технологию создания мишени, облучения и выделения целевого нуклида с приемлемыми выходами всех описанных изотопов йода.

Таблица І	-V	Ізотопы	И	ИХ	характо	еристики
-----------	----	---------	---	----	---------	----------

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

1.2 Параметры производства изотопов на ускорителях

Активность радионуклида, полученного при облучении мишени пучком заряженных частиц, зависит от ряда факторов и определяется следующей формулой [43]:

$$A = nI(1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_{out}}^{E_{in}} \frac{\sigma(E)}{dE/dx} dE,$$
(1.7)

где А – активность радионуклида, расп · с⁻¹;

 $n = N_A/M$ – число ядер в 1 г мишени, N_A – число Авогадро, M – атомная масса ядра мишени, а.е.м.;

I – интенсивность заряженных частиц, частиц · с⁻¹;

 λ – постоянная распада радионуклида, λ =(ln2/T_{1/2}), c⁻¹, T_{1/2} – период полураспада, c; t – время облучения, c;

σ (E) – ядерное сечение реакции образования нуклида, в зависимости от энергии частицы E, см²;

dE/dx – линейная потеря энергии частицей, МэВ · см⁻²/г;

E_{in}, E_{out} – энергия частиц на входе и выходе из мишени соответственно, МэВ, при этом E_{out} для толстых мишеней приравнивают порогу реакции.

Из (1.7) следует, что физический выход (который связан с активностью формулой $A = Y(1 - e^{-\lambda t}))$ радионуклида с данным сечением $\sigma(E)$, тем больше, чем больше ток пучка заряженных частиц, т.е. интенсивность облучения. Помимо этого, выход зависит от энергии частиц E_0 и плотности ядер в мишени п. При увеличении времени облучения величина выхода стремится к насыщению. Состояние насыщения достигается, когда наступает баланс между количеством образующихся и распадающихся нуклидов при постоянной скорости производства.

С течением времени t активность и скорость производства асимптотически стремятся к равенству, как показано на рис. 1.6, где шкала времени измеряется в единицах периода полураспада нарабатываемого радионуклида. Следует отметить, что хотя, строго говоря, насыщение достигается только в течение бесконечного времени, через примерно десять периодов полураспада, продлевать облучение дальше (при данной скорости производства) не имеет смысла, так как количество произведённых нуклидов уже практически равно количеству распавшихся и конечная нарабатываемая активность, в этом случае, не зависит от времени облучения.



Рисунок 1.6 — График зависимости между нарабатываемой активностью и скоростью производства радионуклида в единицах его периода полураспада [44]

Выход радионуклида зависит также от толщины мишенного материала, в котором поглощается пучок заряженных частиц. Если пробег заряженных частиц в веществе мишени больше её толщины, мишень считается "тонкой". В "толстой" мишени пучок поглощается полностью и тогда выход толстой мишени соответствует наибольшей активности, которая может быть получена в конкретной ядерной реакции на единицу тока пучка, воздействующего на мишень с данной энергией. Однако стоит отметить, что основным параметром при производстве радионуклида является сечение, а не выход, который отражает лишь конкретные условия протекания процесса для определенной мишени.

Выход радионуклида выражают в единицах МБк/(мкА·ч) или ГБк/кулон, что

подразумевает активность, образующуюся на единицу суммарного заряда бомбардирующих частиц. Насыщенный удельный выход измеряют в МБк/мкА. При этом 1 мкА час количественно соответствует 6,25 × 10¹² однозарядовых частиц.

Сечение ядерной реакции представляет собой суммарную вероятность образования составного ядра и его распада через конкретный канал реакции.

Существует минимальная энергия частицы, ниже которой ядерная реакция не протекает, за исключением туннельного эффекта. Энергия падающей частицы должна быть достаточной для преодоления кулоновского барьера и порога реакции, при этом она возрастает с увеличением Z материала мишени [45]. Сечение реакции измеряется в барнах (б, мб), где $16 = 10^{-24}$ см⁻², зависимость величины сечения реакции от энергии пучка описывают функции возбуждения.

1.3 Взаимодействие заряженных частиц с веществом

Все заряженные частицы теряют энергию при прохождении через вещество. Эти потери происходят по следующим механизмам [30]:

- ионизация и возбуждение электронных оболочек атомов среды;
- поляризация атомов среды (эффект плотности);
- радиационные потери (тормозное излучение, эффект Черенкова);
- ядерное торможение и перезарядка.

Основным механизмом генерации тепла в мишени при прохождении заряженной частицы через вещество является ионизационное торможение или ионизационные потери. В этом процессе кинетическая энергия заряженной частицы используется для возбуждения и ионизации атомов среды. Энергетические потери частиц из-за ионизации атомов являются доминирующими, поскольку сечение кулоновского взаимодействия с атомами существенно больше, чем с ядрами [46].

Ионизационное торможение характеризуется удельными ионизационными потерями или тормозной способностью. Удельные ионизационные потери представляют собой количество энергии, теряемое частицей на единицу пути в

веществе в результате ионизационного торможения.:

$$S(E) = -\frac{dE}{dx},\tag{1.8}$$

где Е – энергия заряженной частицы, МэВ;

х – пройденный путь, см.

Для точного вычисления удельных потерь используют формулу Бете-Блоха:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 z^2 Z N_A}{m_0 V^2 A} \left(\ln \frac{2m_0 V^2}{I(1-\beta^2)} - \beta^2 \right), \tag{1.9}$$

где ze – заряд ионизирующей частицы; е – заряд электрона,

m₀ – масса покоя электрона; Z, A – атомный номер и массовое число частиц среды,

V – скорость частицы; $\beta = V/c$, (с-скорость света), N_A – число Авогадро;

I –средний ионизационный потенциал среды.

Данная формула предполагает, что масса заряженной частицы много больше массы электрона (M » m). В этом случае максимальная энергия, переданная электрону равна $2m_0V^2$. И тогда выражение (1.9) можно привести к виду:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{144Ze^2 z^2}{AE} \ln\left(\frac{2195E}{I}\right),$$
(1.10)

где Z – атомный номер частицы среды, аем;

А – атомная масса среды, аем;

Е – энергия частицы, МэВ;

I – ионизационный потенциал среды, эВ.

Ионизационный потенциал среды обычно известен и находится из справочных данных [26; 27]. Если ионизационный потенциал неизвестен, его можно аппроксимировать следующими соотношениями [28]:

$$\begin{split} I &= 13Z & \text{для } Z \leq 13 \\ I &= 9,76Z + 58,8Z^{\text{-}0,019} & \text{для } Z > 13 \end{split}$$

Основной результат, получаемый из формулы (1.10), заключается в том, что удельная потеря энергии заряженной частицы на ионизацию пропорциональна квадрату заряда частицы, концентрации электронов в среде, некоторой функции от скорости $\varphi(\vartheta) \sim \frac{1}{v^2}$ и не зависит от массы частицы М:

$$\frac{dE}{dx} \sim z^2 n_e \varphi(\vartheta) \tag{1.11}$$

Ярким примером такой закономерности является кривая Брэгга для удельной ионизации α-частиц (рис. 1.7). Из этого рисунка видно, что удельные ионизационные потери dE/dx возрастают к концу пробега α-частицы, то есть при снижении её скорости.



Рисунок 1.7 — Зависимость dE/dx от пробега частицы (кривая Брэгга)

Ионизационные потери также сильно меняются и от среды к среде, так как dE/dx – линейная функция концентрации электронов в среде n_я = n_яZ, где Z, n_я – заряд и концентрация ядер среды [50].

Второй тип взаимодействия заключается в следующем: с увеличением энергии частицы и приближением её к релятивистским значениям, радиус цилиндрической области вокруг траектории, в которой происходит возбуждение и ионизация атомов среды, увеличивается, что приводит к возрастанию потерь. Однако атомы, находящиеся вблизи траектории, поляризуются, что приводит к уменьшению электромагнитного поля, действующего на электроны, и, как следствие, к снижению темпа роста потерь. Поскольку поляризация пропорциональна числу электронов в единице объема, этот эффект значительно зависит от плотности среды и поэтому называется эффектом плотности.

Третий тип взаимодействия заряженных частиц с веществом включает неупругие столкновения с ядрами мишени. В таких случаях заряженная частица

отклоняется на величину, зависящую от расстояния между частицей и ядром, а также от их зарядов. В некоторых случаях частица теряет энергию, испуская квант энергии, что приводит к образованию тормозного излучения. Суммарная интенсивность тормозного излучения уменьшается обратно пропорционально квадрату массы заряженной частицы, так что данные потери малы для протонов или более массивных частиц.

В четвёртом типе частицы упруго рассеиваются на ядрах материала мишени. При упругом соударении налетающая частица отклоняется, но не излучает и не вызывает какого-либо возбуждения ядра-мишени. Единственная потерянная кинетическая энергия связана с сохранением импульса путём отклонения частицы. Упругие потери энергии играют существенную роль при небольших энергиях частиц (несколько кэВ). Также существенную роль при малых энергиях играет явление перезарядки, связанное с захватом частицей электронов среды и их потерей.

Полные потери заряженной частицы, при движении через материал-мишень, включают в себя все четыре этих процесса. При энергиях, типичных для производства радиоизотопов, частица будет испытывать более миллиона столкновений до полной остановки. Конечно, тип столкновений и точный путь отдельной частицы нельзя предсказать. Однако, поскольку число частиц велико, общее поведение пучка можно вычислить с высокой точностью и надёжностью [49].

Полный путь, который проходит заряженная частица в веществе, называется **пробегом**. Пробег можно рассчитать, проинтегрировав выражение (1.9) по всем значениям Е от 0 до E_{max}:

$$R = \int_0^{E_{max}} \frac{1}{S(E)} dE \tag{1.12}$$

Пробег заряженной частицы обозначается буквой R и измеряется в единицах длины (м, мкм), либо в единицах длины, умноженной на плотность (г/см²). Для вычисления пробега в химическом соединении или гомогенной смеси, можно воспользоваться формулой:

$$\frac{1}{R} = \frac{\omega_1}{R_1} + \frac{\omega_2}{R_2} + \frac{\omega_3}{R_3} + \dots \frac{\omega_n}{R_n}$$
(1.13)

где R₁, R₂, R₃. . . R_n – пробеги отдельных элементов, входящих в состав сложного вещества; ω_1 , ω_2 , ω_3 ... ω_n – относительные доли элементов в смеси или соединении.

Величина пробега заряженной частицы является важной характеристикой для определения количества материала мишени (толщины мишени). От выбора этого параметра зависит как выход целевого нуклида, так и тепловая мощность, переданная пучком мишени.

При облучении твердотельной мишени для достижения максимального выхода целевого нуклида используется максимально доступный ток пучка заряженных частиц. Плотность твёрдых мишеней выше, чем у жидких или газообразных, что приводит к меньшему пробегу заряженных частиц в материале и, соответственно, к большим потерям энергии. Энергия, теряемая частицами в веществе мишени, рассеивается в виде тепла. Одной из основных проблем при разработке и эксплуатации твердотельных мишеней является эффективный теплоотвод. Избыточное тепло, выделяемое в мишени, может вызвать множество негативных последствий, таких как снижение плотности мишени, химические реакции в материале или его продуктах, а также разрушение самой мишени.

Тепловая мощность пучка, диссипированная в мишени пучком заряженных частиц, равна току пучка в микроамперах, умноженному на энергию в МэВ:

 $P = I \cdot E$,

где Р - мощность тепловыделения, Вт; I - ток пучка, мкА;

Е - энергия пучка, осаждённая в мишени, МэВ.

Точное распределение тепла определяется удельными ионизационными потерями вдоль пути пучка в материале мишени, при этом основная часть будет осаждаться вблизи конца пробега частиц в области Брэгговского пика.

1.4 Типы циклотронных мишеней

При производстве радионуклидов (РН) на циклотроне поток заряженных частиц (протонов, дейтронов, *α*-частиц) бомбардирует мишень, где в результате

ядерных реакций образуются нужные нам нуклиды. Для достижения максимального выхода целевого нуклида и минимального содержания примесей PH, к мишени предъявляются специфические требования. Это включает соответствующие физикохимические свойства материалов мишени и подложки, химический состав, агрегатное состояние и степень обогащения (табл. 2). Выбор материала мишени также зависит от его прочности, химической стабильности и теплофизических характеристик.

Агрегатное	Тип мишени	Вещество	Реакция	Продукт
состояние		мишени (Тпл,		
		°C)		
		V (1 900)	V + p	⁴⁴ Ti
		Nb (2 470)	Nb + p	⁸¹ Rb, ⁸² Sr
		Mo (2 620)	$Mo + {}^{3}He; {}^{4}He$	⁹⁷ Ru
	Тугоплавкие		Mo + p	⁸² Sr
	металлы	Rh (1 963)	Rh + p	⁹⁷ Ru
		Tc (2 200)	Tc + p	⁹⁷ Ru
		Ta (3 000)	Ta + p	^{178}W
		Na (98,9)	Na + p	¹⁸ P
		Rb (39)	Rb + p	⁸² Sr
	Легкоплавкие	Cd (321)	Cd + p	¹¹¹ In
	металлы	T1 (304)	Tl + p	²⁰¹ Tl
		Pb (327)	Pb + p	²⁰¹ Tl
Thönga		Bi (271)	Bi + p	²⁰¹ Tl
твердое	Сплори	Cu ₃ As (830)	$As + {}^{3}He; {}^{4}He$	^{75,76,77} Br
	Сплавы	Ga4Ni (900)	Ga + p	⁶⁸ Ge

Таблица 2 — Мишени для получения некоторых циклотронных радионуклидов [51]

Продолжение таблицы 2

Агрегатное	Тип мишени	Вещество	Реакция	Продукт
состояние		мишени (Тпл,		
		°C)		
		NaBr	$Br + {}^{3}He$	⁸¹ Rb
	Соли, окислы	RbCl	Rb + p	⁸² Sr
		TeO ₂	Te + p; d	123 I, 124 I
		U_3O_8	$U + {}^{4}He$	²³⁷ Pu
		H ₂ O	O + p	¹⁸ F
	Криогенные	CO ₂ O	O + p	18 F
	(лёд)	Кг	Kr + p	⁸¹ Rb
		Xe	Xe + p	123 I
	Растворы	H ₂ O	O + p	¹⁸ F
	Расплавы	Nal (661)	I + p	¹²³ I, ¹²⁷ Xe
жидкое		CsCl (645)	Cs + p	¹²³ I, ¹²⁷ Xe
	Металл	Hg (39)	Hg + p	²⁰¹ Tl
	Газ	Ne	Ne + p; d	¹⁸ F
F		Kr	Kr + p	⁸¹ Rb
1 азоооразное			$Kr + {}^{4}He$	⁸² Sr
		Xe	Xe + p	123 I

Для производства изотопов йода могут использоваться как твердотельные мишени, в виде металлического либо диоксид теллура, так и газовые мишени, где мишенным веществом является ксенон. Однако наработка йода на ядрах ксенона в данной работе не рассматривается ввиду необходимости использования пучка протонов с энергией выше 20 МэВ, что является недоступным для большинства медицинских циклотронов.

1.4.1 Металлический теллур

Теллур, с порядковым номером 52, находится в IV группе периодической таблицы. Существует несколько состояний теллура: гексагональная, аморфная,

коллоидальная. Теллур, кристаллизующийся в гексагональной системе, обладает заметной хрупкостью, что облегчает его превращение в порошок. Его цвет серебристо-белый, при этом более чистые образцы имеют выраженный металлический блеск. Теллур демонстрирует некоторые неметаллические свойства, характерные для элементов его группы, таких как сера и селен. Температура плавления гексагональной модификации теллура составляет 449,5 ± 0,3 °C, и плавление происходит с резким переходом от твёрдого состояния к жидкому. Плотность теллура равна 6,25 г/см³, а теплопроводность — 5,99 Вт/(м·К). В расплавленном состоянии теллур остаётся подвижным даже при температурах, незначительно превышающих его температуру плавления. Температура кипения при атмосферном давлении (760 мм рт. ст.) составляет 989 ± 3,8 °С. Пары теллура, как и его жидкая форма, обладают выраженным коррозионным воздействием на металлы, однако с теллуром можно работать в посуде из пирекса или кварца [52].

Мишень из элементарного теллура представляет собой трёхслойную систему, состоящую из металлической подложки, промежуточного никелевого слоя и слоя теллура сверху. Данную трёхслойную систему получают методом гальванического нанесения щелочного раствора на медную пластину с никелевым покрытием. Поскольку теллуровые покрытия не имеют практического значения ДЛЯ промышленности, соответствующие растворы для гальванических покрытий не являются коммерчески доступными. Поэтому ниже будет описана процедура создания подобной мишени. Никелевое покрытие, толщиной 50 мкм, используется для обеспечения необходимой адгезии материала мишени к медной подложке. Процедура никелирования стандартная [9]:

- 1. 500 г NiSO₄·6H₂O растворить в 1000 мл деионизированной воды.
- Медную подложку очистить наждачной бумагой с последующей промывкой деионизированной водой.
- 3. Погрузить медную пластину (катод) и платиновую проволоку (анод) в стакан, ёмкостью 1000 мл, содержащий раствор для никелирования.
- 4. Подключить электроды к источнику постоянного тока, включить питание и настроить ток на значение 400–800 мА.

 Провести электроосаждение никеля в течение 3 минут, затем отключить ток и удалить медную пластину из раствора.

6. Промыть никелированную мишень водой и ацетоном, высушить на воздухе. После этого на данную двухслойную подложку гальванически наносится слой

Те. Для этого готовится гальванический раствор, который включает в себя [53]:

1. 3 г обогащённого (99%) TeO₂.

- 2. 7 г КОН.
- 3. 3 г KBr.
- 4. 500 мл деионизированной воды.

Данный гомогенизированный раствор фильтруется через тонкий стеклянный фильтр (0,45 мм) для удаления любых остаточных частиц.

В лаборатории радиоактивных веществ и технологий ТПУ для нанесения гальванического покрытия используется специально разработанное устройство с возможностью одновременного размещения до четырёх металлических пластин. Данное устройство представляет собой полый цилиндр (рис 1.8) из полиэтилена высокого давления (ПВД), с четырьмя симметричными слотами. В каждый слот помещается медная подложка (катод) и уплотняется резиновым кольцом. Геометрическая форма слота определяет площадь электроосаждения. С помощью опорного штифта медная пластина плотно прижимается к слоту. В центре сосуда находится платиновый электрод (анод).



Рисунок 1.8 — Общий вид устройства для гальванического нанесения металла на подложку

Приготовленный раствор теллура выливается в сосуд для гальваники, снабжённый четырьмя слотами и расположенными в них медными никелированными мишенями. Сверху сосуд накрывает мешалка со скоростью вращения 1000 об/мин и сменой направления каждые 8 сек. для постоянного перемешивания раствора. Электролиз проходит при напряжении 6-12 В и токе 75 мА, в течение 60 мин. Этого времени достаточно для приготовления четырёх мишеней массой 90 мг (±10%)¹²⁴Te каждая (рис. 1.9). После окончания электролиза мишени промываются дистиллированной водой, сушатся, взвешиваются и проверяются на качество.



Рисунок 1.9 — Мишень из металлического Те, созданная с помощью электроосаждения

Постоянный поиск, направленный на улучшение физических свойств, в результате сочетания элементарного теллура с лёгким элементом, привёл к исследованию потенциальных соединений с металлическими теллуридами, такими как Ag₂Te, CuTe, TiTe и MnTe₂ (селеновые аналоги которых были исследованы в [54]), CoTe [55]. Однако низкая массовая доля теллура в этих металлических сплавах представляет собой проблему для получения клинически значимых количеств йода при низких энергиях протонов. Другие комбинации теллура выглядят более многообещающе: H₂Te (98 мас. % Te); BeTe (93 мас. % Te); Li₂Te (90 мас. % Te); Al₂Te₃ (87 мас. % Te); и (82 мас. % Te) [56]. Однако ряд проблем, таких как токсичность газообразного H₂Te, использование жидкого аммиака при получении Li₂Te и ограниченное количество работ, описывающих синтез и свойства BeTe и SiTe, препятствуют дальнейшим исследованиям. Из всех этих вариантов подробно был исследован теллурид алюминия (Al₂Te₃), который обладает наиболее оптимальными физическими свойствами, включающими высокую температуру плавления и образование стеклообразной поверхности при нагревании [57].

Выбор сопряжённого элемента M_x для бинарного соединения M_x¹²⁴Te зависит от желаемых характеристик образующегося вещества. Использование для M лёгкого элемента в сочетании с малым х поддерживает высокую массовую долю теллура, а потери энергии пучка в M низкими. Также увеличивается температура плавления
вещества, что положительно сказывается на тепловых характеристиках мишени. В этой связи, авторы исследования [57; 58] остановили свой выбор на теллуриде алюминия (Al₂Te₃), характеристики которого включают высокую температуру плавления (895 °C) и образование стекловидного слоя при нагревании.

Синтез Al₂Te₃ описывается стехиометрическим уравнением:

$$2Al + 3Te = Al_2Te_3$$

Необходимое количество алюминия и порошка теллура (99,5% ¹²⁴Te) взвешивают и помещают в реакционный сосуд, изготовленный из 10-мм кварцевой трубки, запаянный на одном конце. Вторая 6-мм открытая кварцевая трубка, через которую поступает поток газообразного азота (20 мл/мин), опускается в сосуд, после чего весь узел помещается в печь с температурой 1000 °C. Реакция происходит в трех заданных точках в течение цикла нагревания. Первая заданная температура, 400 °C, значительно ниже порогового значения для запуска реакции, необходима для удаления всей влаги из смеси. Через десять минут температура повышается до 750 °C, при которой происходит экзотермическая реакция, о чем свидетельствует короткий звук, указывающий на образование теллурида алюминия. Последняя отметка температуры, установленная на 850 °C, отжигает продукт в течение одного часа, чтобы обеспечить полноценную реакцию.

Кратковременная и бурная реакция, с образованием теллурида алюминия, приводит к некоторому испарению продукта из-за экстремальных температур. Однако потеря массы из-за улетучивания составляет менее нескольких процентов, что определяется взвешиванием кварцевого сосуда до и после реакционного цикла. Было отмечено, что состав образующегося соединения (Al₂Te₃) остаётся постоянным даже в присутствии большого избытка алюминия. Продукт удаляется из кварцевой трубки путём разбивания сосуда и извлечения содержимого. Изготовление мишени включает в себя равномерное распределение 200 мг Al₂Te₃ по платиновой подложке, после чего мишень нагревают в печи с кварцевым покрытием в атмосфере азота (скорость 20 мл/мин). Температуру в печи медленно повышают до 910 °C, и затем поддерживают постоянной в течение 15 мин. Al₂Te₃ образует непрозрачное твёрдое черное стекло (рис. 1.10), равномерно распределённое по платиновому тиглю с жёсткостью, превышающей жёсткость смеси ¹²⁴TeO₂/6% Al₂Te₃. Ниже перечислены некоторые физические свойства мишени:

- соединение: Al₂Te₃;
- внешний вид: Чёрные кристаллы;
- кристаллическая форма: Чёрное стекло;
- температура плавления, °С: 895;
- плотность, кг/м³: 4 500;
- температура дистилляции, °С: 910.



Рисунок 1.10 — Мишень Al₂Te₃

Особенностью металлического теллура является более низкая температура плавления (452 °C), по сравнению с TeO₂ (733 °C) и Al₂Te₃ (895 °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 [57].

1.4.2 Диоксид теллура

Описанных выше недостатков лишена мишень, состоящая из порошка

диоксида теллура, наплавленного на подложку из тугоплавкого материала. Такая мишень позволяет выделять любой радионуклид йода из мишени без её разрушения методом термодиффузии в области температур фазового перехода плавления TeO₂, 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.

Диоксид теллура представляет собой бесцветный порошок. Не реагирует с водой, реагирует с концентрированными кислотами, щелочами. Сильный окислитель, слабый восстановитель. Существует в виде двух модификаций: жёлтых или бесцветных кристаллов, обе модификации имеют полимерное строение. При 733 °C диоксид теллура превращается в красную жидкость [59], плотность стекловидного TeO₂ оценивается в 5,62-5,67 г/см³ [60; 61].

Методика приготовления мишени из TeO₂, описанная в [27], в том числе применяется при наработке изотопов йода на циклотроне Р7М ТПУ.

Необходимое количество порошка ¹²⁴TeO₂ (150-300 мг) смешивается с 5% Al₂O₃ и наносится на Pt. Pt подложка, с диоксидом теллура на нем помещается в печь. Температура печи устанавливается в несколько этапов. Сначала печь разогревается до 120 °C и поддерживается при этой температуре в течение 10 минут. Затем температура повышается до 450 °C и выдерживается на этом уровне ещё 10 минут. После этого температура увеличивается до 600 °C и поддерживается в течение 3 минут. Наконец, температура повышается до 750 °C и удерживается на этом уровне в течение 15 минут. Оксидный слой плавится и капает вниз на дно полости Pt подложки. При охлаждении образуется стеклянный слой, который прилипает к Pt. Очень важно также выдержать необходимую скорость охлаждения: если мишень охлаждается слишком быстро, то слой TeO₂ может разрушиться. Добавление Al₂O₃ улучшает адгезию слоя TeO₂ к Pt и обеспечивает однородность расплава [15; 62]. Необходимо отдельно подчеркнуть важность отжига при 450 °C и постепенного повышения температуры, основанного на опыте подготовки большого количества мишеней. Причина отжига при 450 °C заключается в том, чтобы полностью преобразовать небольшое количество TeO_3 (которое иногда встречается в TeO_2) в TeO_2 : если этого не сделать, потеря Te в процессе дистилляции будет выше. Мишень, изготовленная настоящим образом представлена на рис. 1.11.



Рисунок 1.11 — Мишень TeO₂. а) - передняя часть мишени (слой TeO₂) б) - задняя часть

Выбор материала подложки для вещества мишени является важным параметром в успешной наработке радиоизотопа. Подложка должна обладать сле-дующими ядерно-физическими характеристиками [49]:

- хорошая теплопроводность;
- химическая инертность;
- отсутствие долгоживущих продуктов активации;
- простота механической обработки и изготовления;
- механическая прочность.

Таким образом, материал подложки должен обеспечивать компромисс между высокой теплопроводностью и химической стойкостью, а мишень должна обладать хорошей адгезией к подложке для обеспечения эффективного теплоотведения. В работе [11] исследовался тантал в качестве подложки для нанесения TeO₂. Авторы отметили, что, несмотря на некоторые потери в теплопроводности по сравнению с платиной, тантал, благодаря своей повышенной прочности, является также подходящим материалом. Тем не менее, непосредственно на тантале создание

прочного покрытия из теллура невозможно из-за плохой адгезии между этими элементами. Для решения этой проблемы необходим тонкий промежуточный слой, который бы удовлетворял требованиям к прочности, теплопроводности и адгезии как к танталу, так и к теллуру. В данной роли хорошо зарекомендовал себя металлический никель, который и использовали авторы работы. Подобная трёхслойная система была применена и в работе [63], где в качестве подложки использовалась никелированная медь. где в качестве подложки использовалась никелированная медь. Менее распространённые, но также подходящие материалы для подложек включают алюминий [64], вольфрам и кремний [65], вольфрам с платиновым покрытием [66], платина/иридий [67—70], а также нержавеющую сталь с родиевым покрытием [71].

Тем не менее, традиционным материалом для подложки при нанесении TeO_2 остаётся платина [27]. Платина обладает хорошей теплопроводностью, что очень важно, поскольку тепло, генерируемое в веществе мишени, должно через подложку эффективно передаваться охлаждающей воде, при этом возможно нанесение слоя TeO_2 методом расплава без использования промежуточных слоёв. Помимо этого, платина не окисляется на воздухе при нагреве и не образует химических соединений с TeO_2 .

Важной характеристикой мишени является адгезия между веществом и подложкой. Хороший адгезивный контакт обеспечивает теплопередачу от разогретого вещества мишени к охлаждаемой подложке. В случае плохого теплового контакта между слоями возникает термическое сопротивление, которое затрудняет передачу тепла. В случае с платиновой мишенью, для улучшения адгезии применяют рифление поверхности Pt подложки нанесением бороздок либо платиновой сетки на место плавления TeO₂ [15; 27]. В этом случае расплавленный TeO₂ кристаллизуется в созданной матрице, в результате чего улучшается теплопередача между слоями.

Основные свойства материалов TeO₂ и Pt представлены в таблице 3 [72-75].

41

	TeO ₂	Pt
Плотность, г · см ⁻³	5,67	21,47
Теплопроводность, Вт · м ⁻¹ · К ⁻¹	3	74,1
Температура плавления, °С	733	1 769
Коэфф. температурного расширения, ·10 ⁻⁶ К ⁻¹	5,55 (283 K)	9,1 (383 K)
Удельная теплоёмкость, Дж · кг ⁻¹ · град ⁻¹	398	132,6
Спектральная излучательная способность	0,343	0,05-0,1

Таблица 3 — Свойства материалов TeO₂ и Pt

1.5 Термическая стабильность оксидной мишени при облучении пучком заряженных частиц

Тепловые и прочностные свойства оксидных материалов заметно отличаются от свойств металлов, что сказывается на термической устойчивости мишеней к длительному и интенсивному облучению.

1.5.1 Механизмы разрушения мишени при облучении пучком заряженных частиц

Исходя из анализа радиационных аварий в мишени на циклотроне 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 (рис. 1.12).



Рисунок 1.12 — Фото сгоревших мишеней. Жёлтое вещество представляет собой TeO₂, коричневое — произведённый йод, а белое — отслоившийся оксид

Диоксид теллура является керамическим материалом с низкой теплопроводностью (3 Вт·м⁻¹·К⁻¹) и способен выдерживать значительные тепловые нагрузки без повреждений. Это подтверждается и методом приготовления мишени, описанным выше. При равномерном нагреве или охлаждении 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.

- Плотность потока заряженных частиц в объёме пучка распределена неравномерно и следует гауссовскому закону распределения. В результате центр мишени подвергается более значительному нагреву по сравнению с периферией.
- 2. Удельные потери энергии частиц при их прохождении через вещество имеют нелинейный характер: они увеличиваются по мере снижения энергии пучка. В слоях мишени, расположенных ближе к её середине и к подложке, выделяется больше тепла, чем на поверхности мишени. Следовательно, чем толще слой оксида, тем более выражен температурный градиент в материале.

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.

К числу специфических повреждений металлов и сплавов, под действием пучка протонов или дейтронов, относится водородное охрупчивание. Это процесс, при котором прочность материала может значительно снижаться за счёт диффузии атомов водорода, одновременно ухудшается также и пластичность материала, делая его хрупким [76]. Протоны или дейтроны теряют энергию и останавливаются в Pt подложке, в результате чего её прочностные свойства ухудшаются, что может привести к деформации всей мишени.

1.5.2 Оптимизация режима облучения

Для обеспечения термической стабильности оксидной мишени во время облучения используют различные способы, целью которых является рассеивание тепловой нагрузки и уменьшение плотности локального тепловыделения.

Профиль пучка. Одной из важнейших характеристик пучка является плотность тока [мкА/см²], с её помощью определяется количество наработанных радионуклидов в мишени. Однако, если плотность тока слишком высока, либо пучок имеет «горячие точки» из-за своей неравномерности, то мишень может сгореть. В этом плане циклотроны, ускоряющие отрицательные ионы имеют некоторое преимущество, так как для извлечения пучка используется обдирочная фольга, что делает пучок более однородным [49].

Плотность тока пучка частиц на выходе из цилиндрического коллиматора следует гауссовскому распределению [49]:

$$i = i_m \cdot e^{-a^2 r^2}$$

где i_m – максимальная плотность тока, мкА/см²;

 $e^{-a^2r^2}$ – Гауссова экспонента ($a^2 = 1/2\sigma^2$, мм⁻²);

 σ – стандартное отклонение Гауссовского распределения;

r - радиальное расстояние от окружности коллиматора.

Профиль пучка и плотность тока на мишени определяют 2 характеристики:

ширина профиля пучка на уровне половины его максимальной интенсивности (от английского «function of the full width at half-maximum», FWHM) и стандартное отклонение гауссовского распределения.

FWHM определяется как расстояние между двумя точками на профиле пучка, где интенсивность пучка равна половине максимальной интенсивности. Это важный параметр, потому что он характеризует ширину пучка и позволяет определить его точность и фокусировку. Для пучка с большим значением FWHM плотность пучка в центре меньше, чем для пучка с малым значением FWHM (рис. 1.13).



Рисунок 1.13 — Профили пучков, проходящих через коллиматор диаметром 20 см с различными гауссовскими распределениями

Для нас это важно тем, что, во-первых, интенсивность пучка в центре, даже при грамотной фокусировке пучка, всегда будет выше, чем на периферии, во-вторых, очень важно распределять пучок максимально равномерно, особенно в контексте облучения оксидной мишени. Локально сфокусированный пучок может довести отдельные части покрытия TeO₂ до плавления и разрушения.

Одним из основных способов снижения локальной плотности тока пучка на мишени является круговое колебание или "wobbling", как упоминается в англоязычной литературе. «Вобблирование» позволяет сгладить неоднородности пучка (горячие точки) и работать с более высокими токами пучка на мишени. Для

этого гауссовское распределение смещается на расстояние R_w (радиус кругового колебания) от оси коллиматора. При этом пучок протонов движется по круговой траектории вокруг оси, как показано на рис. 1.14 [49].



Рисунок 1.14 — Круговое колебание пучка во время облучения. Здесь R_w – радиус круговых колебаний, R – радиус цилиндрического коллиматора

Определение параметров распределения пучка на мишени позволит более точно рассчитывать температуру на её поверхности и эффективность теплоотвода.

Наклон мишени на определенный угол по направлению к пучку.

При наклоне мишени пятно пучка распределяется по большей площади, за счёт чего снижается плотность тепловыделения.

В стандартной геометрии пучок падает на мишень под прямым углом, однако в случае высокоинтенсивного производства изотопов есть смысл изменения угла мишени по направлению к пучку. Рассмотрим подробнее.

Тепловая мощность пучка, падающего на мишень под углом 90°:

$$P^{\perp} = E \cdot I^{\perp},$$

где Р⊥ – мощность пучка, Вт;

Е – энергия пучка, МэВ;

I[⊥] - ток пучка для плоскости мишени, перпендикулярной направлению пучка, мкА. Площадь пятна на плоскости мишени перпендикулярной направлению пучка:

$$S = \pi r^2$$

Контур пятна пучка при $\varphi < 90^{\circ}$ имеет форму эллипса и площадь его зависит от угла наклона плоскости как [9]:

$$S = \frac{\pi r^2}{\sin \varphi}$$

И тогда уменьшение удельной мощности в результате изменения угла:

$$P = P \perp \cdot \sin \varphi$$

Таким образом, при использовании наклонной мишени тепловая мощность снижается на значение ($P^{\perp} \cdot \sin \varphi$), при этом эффективную толщину материала мишени можно уменьшить на значение 1/sin φ без потери выхода радионуклида.

Уменьшение толщины слоя оксидного материала. Наиболее очевидным способом повышения термической стабильности мишени является уменьшение толщины целевого слоя. В случае с оксидными мишенями с недостаточно эффективным передним охлаждением это является единственным способом обеспечить термическую стабильность мишени при сохранении высокой интенсивности облучения. При уменьшении толщины слоя также уменьшаются и удельные потери энергии пучка, что снижает градиент температуры в мишени даже при увеличении рабочего тока.

Переднее охлаждение мишени. В промышленном производстве изотопов йода основной теплосъём происходит за счёт охлаждения потоком воды задней части Рt подложки. Но, из-за плохих термопроводящих свойств TeO₂, тепло, поглощаемое в целевом слое, не может эффективно передаваться охлаждаемой подложке. В этой связи критически важно реализовать эффективное переднее охлаждение мишени.

1.5.3 Оптимизация режима охлаждения

Решающее значение для повышения тока пучка, а значит и производительности наработки PH, имеет повышение отвода тепла от мишени при облучении, который в настоящее время реализуется двумя похожими способами.

Первый способ реализован на циклотроне ТПУ. Для облучения теллуровой мишени используется мишенный узел, разработанный для облучения мишеней вне вакуума (рис. 1.15).



Рисунок 1.15 — Схема мишенного узла для облучения мишени ТеО2

Согласно схеме, пучок ионов проходит по каналу циклотрона и через выходное окно (1), представляющее собой фольгу из сплава Be-Al, попадает на мишень (2). Система ламельных пробников (3) позволяет получить сфокусированный и равномерно распределённый по мишени пучок, с максимальным диаметром 22 мм. Охлаждение мишени (подложки) с тыльной стороны производится струей воды под давлением, направленной в центр подложки. Со стороны падающего пучка мишень охлаждается потоком воздуха комнатной температуры. Расход охлаждающей воды до 8 л/мин, скорость охлаждающего потока воздуха – до 40 м/с. Плоскость мишени располагается к падающему пучку под углом 60°. Для исключения локального разогрева пучком предусмотрено вращение мишени при облучении со скоростью 8 об/мин [13].

Следующим шагом на пути улучшения теплоотвода стало охлаждение передней стороны мишени потоком охлаждённого гелия. Рассмотрим данный способ на примере мишенного узла COSTIS (современное название – Nirta Solid) компании IBA [17; 18]. Данное устройство разработано специально для производства изотопов йода с использованием мишени TeO₂ (рис. 1.16).



Рисунок 1.16 — Мишенный узел COSTIS

Охлаждение передней стороны мишени и выходной титановой фольги происходит потоком гелия с расходом 60 дм³/мин и давлением 2 бар. Подложка мишени охлаждается дистиллированной водой с расходом 8 дм³/мин и давлением 5 бар. По заявлениям производителей, данный способ способен отводить тепловую мощность пучка протонов в количестве до 500 Вт, однако даже такая мощность не производительность наработки позволяют увеличить радиойода, путём использования пучков современных циклотронов с токами до 1 000 мкА. Проблема заключается в гидродинамике: при омывании потоком газа нагреваемой поверхности происходит его торможение, в результате чего температура частиц у поверхности равна температуре этой поверхности, соприкасающиеся с ними движущиеся слои жидкости охлаждаются, отдавая им свою теплоту. В результате формируется тепловой пограничный слой толщиной δ_t , в котором температура меняется от t_c на поверхности до t_ж в невозмущённом потоке. У поверхности мишени тепло передаётся хладогенту только за счёт теплопроводности, соответственно, чем толще тепловой пограничный слой, тем меньше интенсивность теплоотдачи. Сравнивая данную задачу с задачей о переносе теплоты через плоскую стенку, Баскаков [77] приводит соотношение для коэффициента теплоотдачи:

$$\alpha \sim \frac{\lambda}{\delta_t},\tag{1.14}$$

Из формулы 1.14 видно, что коэффициент теплоотдачи к газам, ввиду их малой теплопроводности, будет ниже, чем к жидкостям.

Для увеличения значений коэффициента теплоотдачи стараются уменьшить толщину пограничного слоя. Проще всего для этого увеличить скорость газового потока, что приведёт к усиленной турбулизации и перемешиванию текучей среды. Также часто используют систему из нескольких струй, что может обеспечить значения коэффициента теплоотдачи 200-300 Вт·м⁻²·K⁻¹ при скорости газа ≈ 60 м/с [77]. Таким образом, вклад газового охлаждения в общий теплоотвод является довольно низким и приводит к необходимости поиска более эффективных способов охлаждения.

1.6 Выводы по главе 1. Постановка задачи исследования

Исходя из критериев разрушения мишени, определенных в 1.5.1 очевидно, что TeO₂ не способен эффективно передавать тепло, рассеиваемое в передних слоях, охлаждаемой металлической подложке. Из-за плохой теплопроводности вещество мишени будет перегреваться, что в конечном итоге приведёт к радиационной аварии. Обеспечение термической стабильности мишени во время облучения включает в себя несколько факторов, таких как равномерное распределение плотности тока пучка по поверхности мишени, наклон мишени для увеличения её эффективной площади, уменьшение толщины слоя мишени, а также переднее охлаждение.

Учитывая эти факторы, эффективное переднее охлаждение является критически важным способом улучшения теплоотвода и снижения градиента температуры в слоях мишени при облучении. Описанные в литературе способы переднего охлаждения используют поток охлаждённого газообразного гелия [18] или воздуха [13], однако, из-за низкой теплопроводности газовых хладогентов (0,152 Вт·м⁻¹·K⁻¹ у гелия и 0,0259 Вт·м⁻¹·K⁻¹ у воздуха [78]) они не способны внести

серьёзный вклад в процесс отвода тепла от мишени.

Таким образом для охлаждения передней стороны мишени нужно использовать теплоноситель с гораздо более высоким коэффициентом теплоотдачи, например, мелкодисперсно распылённую воду. Для реализации данного способа охлаждения необходимо разработать устройство переднего охлаждения мишени на основе ультразвуковой колебательной системы, провести экспериментальную проверку работоспособности указанного метода, а также оценить эффективность переднего охлаждения с использованием средств математического моделирования.

Глава 2. Устройство охлаждения твердотельной мишени на основе мелкодисперсного распыления жидкости и его применение на циклотроне

Для решения задачи отведения избыточного тепла от мишени во время облучения, решено использовать переднее охлаждение в виде водяного аэрозоля, что позволит увеличить интенсивность теплоотвода, по сравнению с газовым охлаждением. Для эффективного применения данного подхода необходимо обеспечить формирование аэрозолей, соответствующих повышенным требованиям к монодисперсности, плотности распылительного факела и его размерам. Однако наиболее распространённые типы распылителей и методы распыления (такие как гидравлический, пневматический, электростатический и другие) не способны обеспечить формирование мелкодисперсных аэрозолей с нужными параметрами распыления и требуемой производительностью [79].

Проблема может быть решена с применением ультразвукового распыления, которое обладает уникальными преимуществами такими как низкое эффективность, энергопотребление, способность высокая созданию К мелкодисперсных и монодисперсных аэрозолей, возможность формирования факела в различных геометрических формах распылительного (например, прямоугольной или треугольной), не требует использования дополнительных распылителей (таких как газ или воздух), в каплях жидкости возникают циркуляционные течения, способствующие ускорению процессов теплообмена и массопереноса на поверхности капли [20].

В общем виде устройство охлаждения мишени состоит из следующих основных элементов (рис. 2.1):

1. Ультразвуковая колебательная система (УЗКС), частотой 22 кГц;

- 2. Ультразвуковой генератор с автоматической подстройкой частоты (АПЧ);
- 3. Перистальтический насос и резервуар с дистиллированной водой.

52



Рисунок 2.1 — Система мелкодисперсного распыления жидкости; (1) перистальтический насос, (2) - ультразвуковой генератор (УЗГ), (3) - ультразвуковая колебательная система частотой 22 кГц (УЗКС)

С точки зрения УЗ распыления жидкости реализован подход, известный как низкочастотного заключающийся В метод распыления, использовании ультразвуковых колебаний для воздействия на слой жидкости, находящийся на колеблющейся поверхности. Эти колебания приводят к распылению тонкого слоя жидкости. Принцип работы устройства ультразвукового распыления основан на механизме кавитационного образования капель жидкости, при котором ультразвуковая энергия проходит через несколько стадий преобразования [20]:

- создание звукового давления в распыляемом слое жидкости посредством колебаний излучающей поверхности ультразвукового преобразователя;
- формирование кавитационных пузырьков в жидкости за счёт воздействия

созданного звукового давления, с накоплением энергии внутри этих пузырьков;

- преобразование накопленной в пузырьках энергии в энергию ударной волны при их схлопывании;
- генерация капиллярных волн на поверхности жидкости вследствие воздействия ударной волны;
- распыление жидкости, т.е. увеличение её свободной поверхности за счёт расходования энергии капиллярной волны.

Рассмотрим создание устройства ультразвукового распыления жидкости и выбор оптимальных параметров и режимов распыления.

2.1 Ультразвуковая колебательная система

УЗКС включает в себя преобразователь, согласующий элемент и рабочий излучающий инструмент (рис. 2.2). В преобразователе (активном элементе) колебательной системы осуществляется преобразование энергии электрических колебаний в энергию упругих колебаний ультразвуковой частоты, создавая тем самым знакопеременную механическую силу.

Согласующий элемент системы (пассивный концентратор) выполняет функцию трансформации скоростей и обеспечивает согласование внешней нагрузки с активным внутренним элементом.

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



Рисунок 2.2 — Составные части УЗКС

Таблица 4 — Основные параметры УЗКС

Резонансная частота, кГц	18-30
Тип УЗКС	Полуволновая
Тип пьезоэлемента	пэу 38х16х5,0 \ 43кГц \ ЦТС-24
Материал отражающей накладки и	сталь 12Х18Н10Т
концентратора	
Среднеквадратичный диаметр	20-100
капель, мкм	
Скорость звука в материалах накладки	5 740
и концентратора, м/с	

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 рабочего инструмента, где и происходит образование факела распыления.

В ультразвуковой колебательной системе для распыления жидкостей толщина каждого пьезоэлектрического элемента выбирается равной четверти или половине длины волны формируемых колебаний в пьезоматериале. Толщина торцевой стягивающей накладки (преобразователя) составляет половину длины волны

формируемых колебаний в материале накладки. Рабочая накладка (концентратор) изготавливается с толщиной, равной одной или двум полуволнам формируемых колебаний в материале накладки и имеет плавные радиальные и экспоненциальные переходы в середине каждого полуволнового участка [80].

Преобразователь включает два пьезокерамических кольцевых элемента, излучающую накладку (концентратор), отражающую накладку, стягивающие шпильки и крепёжный поясок, предназначенный для монтажа ультразвуковых колебательных систем в технологическое оборудование. Для обеспечения электрической изоляции внутренней цилиндрической поверхности пьезоэлементов от металлической стягивающей шпильки используется изолирующая втулка.

Для увеличения амплитуды колебаний рабочего инструмента и обеспечения согласования преобразователя с нагрузкой (обрабатываемой средой) используются ультразвуковые концентраторы. В данной УЗКС применяется составной концентратор с плавным радиальным переходом.



Рисунок 2.3 — Общий вид составного ступенчато-радиального концентратора [81]

Рассчитаем размеры УЗКС с частотой 22 кГц. Диаметр входного и выходного отверстий равен наружному (38 мм) и внутреннему (16 мм) диаметру пьезоэлементов.

Расчёт размеров концентратора производится с использованием графических зависимостей и номограмм. На рис. 2.4 приведены зависимости коэффициента усиления К от безразмерных параметров n1 и n2, определяющих длины l1 и l2 входного и выходного участков концентратора для различных значений N = D1/D2 диаметров его ступеней [20].



Рисунок 2.4 — Диаграмма расчёта концентраторов

Исходя из диаграммы 2.4, для значения $N = 38/16 = 2,3, n_1 = n_2 = 1,2.$

Коэффициент усиления M = 3,8 - 4,5.

Параметры n1 и n2 связаны с длинами участков концентратора l₁, l_z и l₂ следующими соотношениями [82]:

$$l_1 = \frac{c}{2\pi f} n_1,$$
$$l_z = \frac{c}{2\pi f} lnN$$
$$l_2 = \frac{c}{2\pi f} n_2$$

Данные формулы применимы для экспоненциальной формы концентратора. Для расчёта радиального перехода требуется внести поправки:

$$l_1 = l_2 = \frac{c}{2\pi f} n_1 \cdot k,$$

где k (для N = 2,3) = 0,907 – поправочный коэффициент. Отсюда размеры концентратора:

$$l_1 = l_2 = \frac{5740}{2\pi \cdot 22000} \cdot 1,2 \cdot 0,907 = 0,045 \text{ м} = 45 \text{ мм}$$
$$l_z = \frac{5740}{2\pi \cdot 22000} \cdot 0,864 = 0,036 \text{ м} = 36 \text{ мм}$$

Для осуществления установки УЗКС в технологическую линию необходимо использование крепёжного пояска в узле колебаний для обеспечения максимально эффективной работы.



Рисунок 2.5 — Общий вид составного ступенчато-радиального концентратора с крепёжным пояском [83]

Значения l₃ и D₃ выбираются из таблицы 5 [83].

Таблица 5 — Типоразмеры концентраторов с крепёжным буртиком

D ₁ ,	D ₂ ,	D ₃ ,	D4,
24	10	30	1,5
38	16	43	2
50	30	55	2,5

На основе МКЭ были получены новые аналитические выражения для расчёта [83]:

$$l_1 = l_1^* \cdot 0,77$$

 $l_2 = l_2^* \cdot 1,19 - l_3$
 $l_7 = l_7^*.$

где l_{1*}, l_{2*} и l_{z*} - длины концентратора без крепёжного пояска.

Отсюда размеры:

$$l_1 = 45$$
 мм · 0,77 = 34,65 мм $l_2 = 45$ мм · 1,19 – 2 = 51,55 мм

 $l_z = 36 \text{ MM}$

Плавный переход концентратора выполнен радиальным, а его размеры выбраны из условия:

$$R = 1,2 \dots 1,3 \frac{4L_z^2 + (D_1 - D_2)^2}{4(D_1 - D_2)},$$

где L_z – длина плавного перехода; D₁, D₂ – поперечные размеры формирующей и излучающей поверхности концентратора.

Отсюда размер радиального перехода равен:

$$R = 1,25 \frac{4 \cdot 38^2 + (38 - 16)^2}{4 \cdot (38 - 16)} = 71 \text{ MM}$$

Чертёж концентратора представлен в приложении Б.

Отражающая накладка накручивается на стягивающую шпильку, поэтому диаметр резьбового отверстия в отражающей накладке соответствует диаметру стягивающей шпильки (прил. В).

Фторопластовая изолирующая втулка, размещённая между пьезоэлементами и стягивающей шпилькой, предназначена для электроизоляции. Диаметр стягивающей шпильки должен быть меньше диаметра внутреннего отверстия пьезоэлементов на удвоенную толщину изолирующей втулки, при этом минимальная толщина втулки составляет 1 мм. Таким образом, если внутренний диаметр пьезоэлемента равен 16 мм и толщина изолирующей втулки составляет 1 мм, то диаметр стягивающей

шпильки должен быть 14 мм, с резьбой M14x1.

По всей длине УЗКС проходит сквозное отверстие Ø=3 мм, через которое на рабочий инструмент подаётся вода для распыления.

Оптимальной формой инструмента для воздействия на жидкие и жидкодисперсные среды является рабочий инструмент грибовидной формы. Он представляет собой усечённый конус, как показано на рис. 2.6 [20].



Рисунок 2.6 — Рабочий инструмент УЗКС

При этом

$$\frac{A_m}{D_2} \le (1,5 \div 1,8)$$

Исходя из данной формулы, длина участка A_m лежит в диапазоне 24÷29 мм. В опубликованных экспериментальных данных [85] говорится, что для данных размеров угол *α* должен равняться 71°÷73°.

В целях удобства изготовления угол *α* выбран равным 70°, расстояние $a_m - 27$ мм, расстояние от концентратора до поверхности рабочего инструмента – 2 мм.

Угол распыления поверхности рабочего инструмента равен 180°, таким образом, формируемый факел аэрозоля будет иметь ширину, приблизительно равную диаметру поверхности распыления.



Рисунок 2.7 — Внешний вид УЗКС 22 кГц

2.2 Ультразвуковой генератор

Для питания ультразвуковых колебательных систем и практической реализации оптимальных режимов ультразвукового воздействия, необходим ультразвуковой генератор. Генератор должен обеспечивать контроль электрических параметров и обладать автоматической подстройкой частоты для работы с ультразвуковыми колебательными системами.

Ультразвуковая колебательная система распылителя является резонансной системой и поэтому для устойчивой работы требует питания на своей резонансной частоте. Резонансная частота УЗКС может изменяться в процессе работы по причине изменения акустической нагрузки (например, вязкость распыляемой жидкости, производительность распыления), поэтому необходимо поддерживать частоту выходного напряжения ультразвукового генератора равной резонансной частоте колебательной системы при изменяющейся нагрузке на УЗКС. Как правило, для реализации этого применяются системы фазовой автоподстройки частоты (ФАПЧ).

В качестве УЗ генератора был использован УЗГ-100 (рис. 2.8). Данный генератор предназначен для питания пьезокерамических ультразвуковых

излучателей и обеспечивает автоматическое поддержание резонансной частоты при изменении акустических свойств рабочей среды [86]. Основные параметры представлены в таблице 6.

Таблица 6 — Осн	овные параметры	генератора УЗГ-100
-----------------	-----------------	--------------------

Параметр	Значение
Частота выходного напряжения, кГц	18-30
Номинальная выходная мощность, не менее, Вт	100
Габаритные размеры, мм	74x115x220
Выделяемая тепловая мощность, не более, Вт	15
Номинальный размах выходного напряжения, В	400



Рисунок 2.8 — УЗГ-100

Подключение УЗКС к генератору происходит следующим образом. Между пьезоэлементами устанавливаются 3 медные пластины для улучшения акустического контакта. Для создания электрического поля используются 3 электрода: 2 электрода

на внешних торцах пьезоэлементов подключаются к общему проводу генератора, на средний электрод подаётся напряжение питания УЗКС (рис. 2.9).



Рисунок 2.9 — Подключение УЗКС к УЗГ

2.3 Дисперсный состав водяного потока, создаваемого ультразвуковым излучением

Важными дисперсными характеристиками охлаждающего водяного потока, создаваемого УЗ распылением, являются средний диаметр формируемых капель, диаметр факела распыления и толщина слоя воды, падающей на охлаждаемую мишень. Эти параметры существенно зависят от свойств жидкости и характеристик ультразвукового воздействия. Поэтому для каждой распыляемой жидкости требуется индивидуальная настройка ультразвукового воздействия в зависимости от её свойств. В настоящее время процесс подбора необходимого уровня ультразвукового воздействия выполняется вручную, на основе эмпирических данных и опыта [87].

Взаимосвязь между частотой УЗ распылителя и среднемедианным диаметром капель аэрозоля, с использованием выражения [88]:

$$D_{\mathrm{капли}} = a \cdot \sqrt[3]{8\pi\sigma/(\rho f^2)},$$

где *a* = 0,12;

 σ - поверхностное натяжение (72,86 × 10⁻³ Н/м для воды);

 ρ - плотность распыляемой жидкости (997 кг/м³ для воды);

f - частота УЗ колебаний (22 000 Гц).

Отсюда

$$D_{\text{капли}} = 0,12 \cdot \sqrt[3]{\frac{8\pi \cdot 72,86 \cdot 10^{-3}}{997 \cdot (22\ 000)^2}} = 18,7$$
 мкм

Исходя из разработанной конической поверхности распыления и полученных экспериментальных данных, диаметр факела равняется диаметру мишени (35 мм), длина водяного потока до спада – 70 мм.

2.4 Выводы по главе 2

Для интенсификации теплообмена на поверхности мишени разработано и изготовлено устройство мелкодисперсного распыления жидкости, состоящее из ультразвуковой колебательной системы, ультразвукового генератора и насоса подачи воды. На поверхности рабочего инструмента УЗКС вода переходит в аэрозольное состояние за счёт увеличения поверхностной энергии плёнки жидкости благодаря наложению механических колебаний ультразвуковой частоты. В результате образуется факел мелкодисперсной распылённой жидкости, который направляется на переднюю поверхность разогретой мишени.

Основным преимуществом ультразвукового устройства распыления является возможность изменения толщины слоя воды на поверхности мишени до минимально целесообразного (0,1 мм), что позволяет с одной стороны, интенсифицировать теплообмен за счёт водяного охлаждения, с другой снизить потери энергии пучка при прохождении слоя жидкости. В следующей главе описана экспериментальная

апробация разработанного устройства при облучении мишени из TeO₂ на пучке дейтронов циклотрона Р7М.

Глава 3. Экспериментальная апробация новых подходов к охлаждению твердотельной оксидной мишени

Как было сказано в главе 1, основной недостаток использования газа (воздуха или гелия) в качестве хладогента для охлаждения передней поверхности мишени заключается в низком коэффициенте теплоотдачи. В этом контексте распыляемая вода представляет собой значительное преимущество (табл. 7). Коэффициенты теплообмена при охлаждении потоком воды в десятки раз больше, чем при охлаждении потоком газа, при этом пропорционально увеличивается и количество отводимой тепловой энергии.

Таблица 7 — Диапазоны значений коэффициентов теплоотдачи в различных условиях, Вт/(м² · K) [89]

Параметр	Значение
Свободная конвекция в газах	5-30
Свободная конвекция воды	$10^2 - 10^3$
Вынужденная конвекция газов	100-500
Вынужденная конвекция воды	$500-2 \cdot 10^4$
Свободная конвекция воды	$10^2 - 10^3$

Для определения эффективности теплообмена разогретой поверхности мишени с охлаждающей жидкостью, а также для экспериментальной апробации разработанного устройства в условиях, приближенных к производственным, на циклотроне Р7М ТПУ, были выполнены эксперименты по облучению и охлаждению твердотельной оксидной мишени с использованием УЗКС, описанной в главе 2.

3.1 Облучение и охлаждение мишени из TeO₂ в производственном режиме циклотрона

Для проверки работоспособности устройства в условиях, максимально приближенных в производственным, была изготовлена мишень, состоящая из слоя TeO₂, толщиной 0,083 мм, нанесённого на Pt подложку, толщиной 0,29 мм (рис. 3.1).



Рисунок 3.1 — Мишень ТеО₂, нанесённого на Рt подложку

Эксперимент проводился с использованием пучка дейтронов. Время облучения составляло 5 мин, максимальная мощность пучка 113 Вт. Охлаждалась мишень только со стороны слоя TeO₂, со следующими параметрами облучения и охлаждения:

- тип ускоренных частиц d;
- энергия 11,3 МэВ;
- ток $10\pm 0,1$ мкА;
- мощность пучка 113±1 Вт;
- тепловыделение в слое TeO₂ 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 TeO₂ 0,2 мм;
- мишень располагалась под углом 90° к пучку;
- устройство распыления располагалось под углом 45° к облучаемой мишени.

Общая схема экспериментов состоит в том, что 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 (рис. 3.2). 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 этой связи важно подобрать такой поток распыляемой воды, чтобы режим кипения постоянно поддерживался пузырьковым и не переходил в плёночный либо в обычное конвективное омывание мишени водой. Данный режим кипения зависит от температуры на поверхности мишени и может регулироваться увеличением либо уменьшением производительности распыления.



Рисунок 3.2 – Схема эксперимента. 1 – охлаждаемая мишень, 2 – пучок заряженных частиц, 3 – канал циклотрона, 4 – ультразвуковой генератор, 5 – перистальтический насос, 6 – бак с дистиллированной водой, 7 – устройство распыления на основе

УЗКС, 8 – факел распыления.

Основным механизмом генерации тепла в мишени при прохождении заряженных частиц через вещество является ионизационное торможение. Этот процесс происходит, когда заряженная частица взаимодействует с электронами атомных оболочек. В результате кинетическая энергия частиц расходуется на возбуждение и ионизацию атомов среды. Потери энергии, связанные с ионизацией, преобладают, так как сечение кулоновского взаимодействия с атомами значительно больше, чем сечение взаимодействия с ядрами атомов [46].

После прохождения поочерёдно Ве-АІ фольги, отделяющей вакуум от атмосферы, слоя воздуха между фольгой и мишенью, а также слоя воды, энергия пучка снизилась до 11,3 МэВ. Используя данные из таблицы в приложении А установлено, что мощность тепловыделения в слое TeO₂ равна 19 Вт, в слое Pt 94 Вт (рис. 3.3). Для расчёта потерь энергии в слоях TeO₂ и Pt использовалась программа SRIM (Stopping Range of Ions in Matter) [90]. SRIM – это программное обеспечение, разработанное для моделирования прохождения ионов через вещество и расчёта их пробега в различных материалах. Программа была создана для изучения взаимодействия ионов с материалами на микроскопическом уровне. SRIM помогает рассчитать величины удельных потерь энергии заряженных частиц в веществе.



Рисунок 3.3 — Изменение величины удельных потерь энергии и мощности тепловыделения по толщине двухслойной мишени (толщина TeO₂ – 0,083 мм, толщина Pt – 0,29 мм)

Из рис. 3.3 видно, что пучок осаждает 19 Вт тепла в TeO₂ и затем теряет всю оставшуюся мощность в Pt.

Результаты измерений приведены в табл. 8 и на рис. 3.4. После установления теплового равновесия была проверена мишень: слой TeO₂ 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.

70



Рисунок 3.4 — Изменение температуры мишени TeO₂ 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 8 —	Результаты	измерений	при	облучении	мишени	TeO_2	током	10	мкА
--	-------------	------------	-----------	-----	-----------	--------	---------	-------	----	-----

Продолжительность облучения, с	Температура, °С
0	$24 \pm 0,096$
60	$105 \pm 0,42$
120	$120\pm0{,}48$
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±1 Вт, тепловыделение в слое TeO₂ – 31 Вт, а в слое

Pt – 138,5±0,3 Вт. Параметры охлаждения остались без изменений. В табл. 9 и на рис. 3.5 представлены результаты измерений.



Рисунок 3.5 — Изменение температуры мишени TeO₂ 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 9 — Результаты измерений при облучении мишени ТеО2 током 15 мкА

Продолжительность облучения, с	Температура, °С
0	$27 \pm 0,1$
60	200 ± 0.8
120	250 ± 1,0
180	$277 \pm 1,1$

В данном эксперименте тепловое равновесие не установилось. Материал мишени (слой TeO₂) частично разрушился, на поверхности появились ярко выраженные "горячие точки" – места локального перегрева мишенного материала.
3.2 Выводы по главе 3

Эксперименты доказали работоспособность и высокую эффективность охлаждения твердотельной мишени при использовании разработанного устройства мелкодисперсного распыления жидкости. Использование только лишь переднего охлаждения позволило мишени из диоксида теллура сохранять работоспособность при общей подводимой мишени TeO₂ пучком ускоренных d тепловой мощности 113 Вт. При низком расходе охлаждающей жидкости (15 мл/мин) и тепловой мощности 113 Вт, температура мишени за время 150 с достигала стационарного значения в районе 120-130 °C. В этих условиях мишень TeO₂ оставалась без внешних изменений, что говорит о возможности использования предложенного способа охлаждения в производственной практике. Расход воды необходимо поддерживать на минимально возможном значении, в целях уменьшения потерь энергии пучка заряженных частиц.

Разработанный метод обеспечивает повышение рабочего тока пучка заряженных частиц при производстве радионуклидов благодаря более эффективному охлаждению передней поверхности мишени по сравнению с существующими аналогами [13; 18]. Увеличение рабочего тока пучка позволяет достичь большего выхода радионуклида, повысить производительность технологии (то есть активность производимого изотопа в единицу времени) и сократить затраты машинного времени циклотрона, что, в свою очередь, значительно снижает себестоимость производства. В главе 4 настоящей работы результаты проведённых экспериментов составили основу математической модели двухстороннего охлаждения ТеО₂ мишени.

Глава 4. Математическая модель процессов охлаждения облучаемой мишени с использованием переднего и заднего теплоотвода с помощью пакета моделирования COMSOL Multiphysics

В данной главе представлены математические модели процессов облучения и охлаждения мишени из TeO₂ для двух случаев. Первый – моделирование эксперимента по использованию мелкодисперсно распылённой воды в качестве хладогента для переднего охлаждения мишени, который был описан в главе 3. Второй – моделирование промышленного производства изотопа йод-123 на циклотроне с использованием различных теплоносителей для переднего охлаждения (воздух, гелий, вода). В результате моделирования рассчитано тепловое поле облучаемой мишени и коэффициенты теплоотдачи при использовании различных хладогентов.

В качестве среды моделирования использовался программный пакет COMSOL Multiphysics [21], который представляет собой комплексную интегрированную среду, используемую для моделирования разнообразных физических процессов в рамках единого программного интерфейса. При исследовании сопряжённого теплообмена COMSOL Multiphysics предоставляет инструмент для создания и анализа моделей, учитывающих взаимодействие тепловых процессов с другими физическими факторами, в нашем случае, – с пучком заряженных частиц.

4.1 Количественная оценка теплоотвода переднего охлаждения мишени из диоксида теллура

Эксперименты, описанные в главе 3 показали работоспособность предложенного способа охлаждения передней стороны мишени, где в качестве теплоносителя используется мелкодисперсно распылённая вода (D_{капли}=18,7 мкм, расход 15 мл/мин). В результате экспериментов была измерена температура Pt подложки в зависимости от тепловой мощности пучка и производительности распыления. Используя эти данные, оценим интенсивность теплоотвода с

использованием средств математического моделирования.

Так как охлаждение мишени реализовано только с передней стороны (со стороны пучка), то тепло, выделяемое в слоях TeO_2 и Pt уходит в сторону охлаждаемой поверхности, туда же направлен и градиент температуры. Из этого следует, что экспериментально измеренная температура на поверхности Pt ($129 \pm 0,51$ °C) является максимальной, что учтено в дальнейшем расчёте эффективности теплоотдачи.

Моделирование проводилось с использованием модуля Heat Transfer in Solids and Fluids программного комплекса COMSOL Multiphysics [21; 91]. Данный модуль позволяет моделировать процесс теплопереноса в твёрдых телах с использованием метода конечных элементов (МКЭ). Процесс моделирования состоит из следующих шагов: определение геометрии, выбор моделируемого материала, выбор типа теплообмена, определение граничных и начальных условий, определение сетки конечных элементов, выбор решателя и визуализация результатов. Для решения задачи была создана геометрия Pt диска с углублением, на котором расположен слой TeO₂ (рис. 4.1). Свойства моделируемых материалов описаны в разделе 1.4.2. При создании геометрии мишени принималось, что слой TeO₂ распределён равномерно по тиглю Pt подложки и его толщина одинаковая по всей площади.



Рисунок 4.1 — Геометрия мишени из TeO₂ (1) на Pt подложке (2). Размеры мишени: диаметр TeO₂ - 20 мм, толщина – 0,083 мм; диаметр Pt – 36 мм, толщина Pt – 0,29 мм. Слой TeO₂ располагается в специальном тигле Pt подложки с диаметром 22 мм.

Теплообмен может осуществляться тремя способами: теплопроводностью, конвекцией и излучением. Теплопроводность подразумевает молекулярный перенос теплоты между соприкасающимися телами или частями тел с различной температурой. Так как теплопроводность связана с распределением температуры внутри тела, необходимо установить понятия температурного поля и градиента температуры.

Температурным полем называется совокупность значений температуры для всех точек пространства в данный момент времени. Если температура меняется во времени, поле является нестационарным, если не меняется, то поле стационарное. Градиентом температуры называется вектор, направленный по нормали к изотермической поверхности в сторону возрастания температуры. Направление возрастания температуры принимают за положительное направление градиента.

Необходимым условием распространения тепла является неравномерность распределения температуры в исследуемом веществе, т.е. градиент температуры должен быть не равен нулю. Связь между количеством переданной теплоты, проходящей через площадь сечения за единицу времени и с градиентом температуры определяется законом Фурье [92]:

$$\vec{q} = -\lambda \text{grad}T$$
 (4.1)

Количество теплоты, проходящей через единицу поверхности в единицу времени, называют плотностью теплового потока или вектором плотности теплового потока, [Вт/м²], тепловой поток направлен в сторону скорейшего убывания температуры [93]:

$$q = \frac{dQ}{dSdt}, \text{или } \vec{q} = -\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \vec{n}$$
(4.2)

Коэффициент пропорциональности λ в уравнении 4.2 называется коэффициентом теплопроводности. Этот параметр является характеристикой физического свойства вещества, определяющей его способность проводить тепло. Значение коэффициента теплопроводности представляет собой количество теплоты, которое проходит через единицу площади вещества в единицу времени при температурном градиенте, равном единице [92]:

$$\lambda = -\frac{|\vec{q}|}{\text{grad}T} \tag{4.3}$$

Коэффициент теплопроводности зависит от давления и температуры. Для большинства веществ коэффициенты теплопроводности определяются опытным путём и для технических расчётов берутся из справочных таблиц. Коэффициент теплопроводности TeO₂ достаточно низкий (3 Вт/м·К), что является причиной проблем при охлаждении мишени для наработки радионуклидов йода.

Для моделирования теплообмена в твёрдых телах COMSOL использует стационарное уравнение теплопроводности в дифференциальной форме закона Фурье, поскольку температурное поле в нашем случае является установившемся и независящем от времени [91]:

$$\rho C_p \, u \cdot \nabla T + \nabla \cdot q = Q \tag{4.4}$$

Здесь:

 ρ – плотность твёрдого тела, кг/м³;

$$C_p$$
 – теплоёмкость твёрдого тела при постоянном давлении, Дж/(м³·K);

u – поле скоростей, м/с;

Q – мощность источника объёмного тепловыделения, Вт/ м³;

q – тепловой поток, Вт/ м², который определяется уравнением Фурье:

$$q = -\lambda \nabla T, \tag{4.5}$$

где λ – теплопроводность материала, Bт/(м· K);

∇Т – градиент температуры, К /м.

В связи с тем, что пучок циклотрона имеет гауссово распределение плотности, объёмное тепловыделение задавалось с помощью узла Deposited Beam Power и типом распределения плотности Top-hat. Исходя из динамики пучка циклотрона P7M,

радиус пучка R выбран равным 11 мм и размер переходной зоны сглаживания $\delta R = 6$ мм, что соответствует скруглённому профилю (разрывный цилиндрический пучок). Важно отметить, что мишень находится под углом 90° к пучку, ось х направлена перпендикулярно облучаемой поверхности мишени – по направлению движения пучка ионов.

При подводе тепла к жидкости, температура которой равна или близка к температуре насыщения (то есть температуре кипения при данном давлении), может происходить фазовый переход. В случаях, когда жидкость, находящаяся при температуре насыщения или немного ниже её, движется к нагреваемой поверхности и частично или полностью испаряется, то говорят, что происходит кипение при вынужденной конвекции. Данный процесс характеризуется высокой интенсивностью и сопровождаются переносом больших количеств теплоты и массы. В этом заключается основная идея разработанного способа охлаждения - использование энергии фазовых переходов и вынужденной конвекции для эффективного охлаждения мишени.

При достижении теплового потока, достаточного для образования пузырьков на нагреваемой поверхности, происходит пузырьковое кипение. Механизм этого процесса заключается в формировании и развитии центров парообразования на поверхности нагрева, причем интенсивность парообразования увеличивается с ростом теплового потока *Q*. Высокие коэффициенты теплоотдачи при кипении объясняются более эффективным, по сравнению с турбулентным переносом в однофазной среде, механизмом теплопереноса: основная часть теплоты отводится из пристенного слоя жидкости через паровые пузырьки и частично перегретую жидкость, увлекаемую пузырями при их отрыве и подъеме [94].

При развитом пузырьковом кипении вся теплота расходуется на образование пара, поэтому уравнение теплового баланса при кипении имеет вид [92]:

$$Q = G''\mathbf{r},\tag{4.6}$$

где Q – тепловой поток, Вт;

r – теплота фазового перехода жидкости, Дж/кг;

G" - количество пара, образующегося в единицу времени в результате кипения

78

жидкости и отводимого от её свободной поверхности, кг/с.

Стоит отметить, что высокая интенсивность теплообмена при кипении возможна только в случае, если жидкость смачивает теплоотдающую поверхность. Смачиваемость твёрдой поверхности определяется краевым углом θ , который при пузырьковом кипении меньше 90 градусов. Это означает, что интенсивный процесс пузырькового кипения возможен лишь на поверхностях, способных эффективно смачиваться жидкостью [94].

Однако, тепловой поток Q, отводимый от разогретой поверхности, не может увеличиваться бесконечно. При некотором значении температурного напора ΔT тепловой поток принимает своё максимальное значение, при котором режим кипения из пузырькового становится сначала переходным, а затем плёночным. В этом режиме вся поверхность нагрева покрывается сплошной плёнкой пара, в результате чего основным режимом отвода тепла становится излучение и интенсивность теплоотвода падает. Данного режима кипения стараются избежать из-за высокой вероятности перегрева и разрушения нагреваемой поверхности [92].

Интенсификация теплообмена при кипении может быть достигнута двумя основными способами: увеличением температурного напора между теплоотдающей поверхностью и температурой насыщения жидкости, или изменением условий на поверхности, где происходит кипение. Наиболее эффективный метод повышения эффективности теплообмена заключается в создании оптимальных условий на поверхности для образования, роста и отделения паровых пузырей. Это можно реализовать путем увеличения шероховатости поверхности, нанесения различных покрытий, или применения оребрения с определенными геометрическими параметрами, что способствует развитию теплоотдающей поверхности и повышению интенсивности кипения [94].

В нашем случае распылённая жидкость при постоянной температуре и давлении движется вдоль разогретой поверхности мишени, что является вынужденной конвекцией, при этом производительность распыления достаточно мала (0,25 мл/мин), что позволяет жидкости быстро достичь температуры насыщения, необходимой для фазового перехода. Отсюда, механизм теплоотвода можно охарактеризовать как вклад двух компонентов: вынужденной конвекции и кипения.

Таким образом, основная задача описания теплообмена при охлаждении разогретой мишени потоком мелкодисперсно распылённой воды состоит в определении суммарного коэффициента теплоотдачи или интенсивности теплообмена за счёт, как конвекции, так и кипения, при этом усреднённого по поверхности и во времени. Оценка интенсивности теплоотвода на охлаждаемой поверхности мишени определяется через коэффициент теплоотдачи из уравнения Ньютона-Рихмана:

$$q_0 = h\Delta T \tag{4.7}$$

где q_0 – тепловой поток через границу теплообмена, Вт·м⁻²;

h - коэффициент теплоотдачи, Вт·м⁻²· K⁻¹;

 ΔT – разница между температурой горячей стенки и температурой хладогента.

Поскольку коэффициент теплоотдачи может варьироваться в зависимости от конкретного участка поверхности теплообмена, различают средний коэффициент теплоотдачи (рассчитанный по всей поверхности) и локальный коэффициент теплоотдачи (определяемый на малом участке поверхности). В данном случае, при решении задачи, будем использовать значение среднего коэффициента теплоотдачи, что позволяет учесть общую эффективность теплообмена по всей поверхности нагрева.

Модель решалась со следующими граничными условиями:

- тепловыделение в слое TeO₂: 19 Вт;
- тепловыделение в слое Pt: 94 Вт;
- коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени: от 9 000 до 10 000 Вт·м⁻² · K⁻¹;
- все остальные поверхности мишени адиабатичны.

Сетка для решения тепловой задачи задавалась с помощью встроенного узла physic-controlled mesh с размером элементов extremely fine (рис. 4.2). Для исследования устойчивости производился расчёт с постепенным увеличением количества узлов сетки, во всех случаях сходимость результатов решения достигала уровня 10⁻³.



Рисунок 4.2 — Графическое представление исследуемого объекта вместе с расчётной сеткой, используемой для численного моделирования

Для определения интенсивности теплоотвода было рассчитано температурное поле при различных коэффициентах теплоотдачи на передней охлаждаемой стороне мишени (табл. 10). Из результатов видно, что значение температуры, наиболее близкое к эксперименту, рассчитывается при коэффициенте теплоотдачи равном 9 500 Вт·м⁻²·K⁻¹ (131,39 °C расчётная и 129 ± 0.51 °C экспериментальная температура).

Таблица 10 — Рассчитанное значение максимальной температуры Pt в зависимости от коэффициента теплоотдачи на передней поверхности мишени

Коэффициент теплоотдачи, Вт·м ⁻² ·К ⁻¹	Температура Рt, °С
9 000	136,20
9 500	131,39
10 000	127,05

Распределение температуры показано на рис. 4.3. Для коэффициента теплоотдачи 9 500 Вт·м⁻²·К⁻¹ максимальная температура приходится на неохлаждаемую Pt (131,4 °C), в то время как поверхность TeO₂ имеет максимальную температуру 108 °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 Вт·м⁻²·К⁻¹.

Рисунок 4.3 — Температурное поле мишени при интенсивности теплоотвода 9 500 Вт·м⁻²·K⁻¹; а – вид спереди, б – вид сзади. Максимальная температура наблюдается в Рt подложке (рис. 4.3 б).

Градиент температуры, представленный на рис. 4.4, показывает изменение температуры по толщине слоёв TeO₂ и Pt. Из-за плохих теплопроводящих свойств температура более тонкого слоя TeO₂ изменяется сильнее, чем у более толстой Pt, что ещё раз доказывает необходимость использования интенсивного переднего охлаждения двухслойной мишени.



Рисунок 4.4 — Изменение температуры по глубине мишени для $h = 9~500 \text{ Bt} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$. Градиент температуры в TeO₂ (левая четверть рисунка Arc

length <0,083 mm) гораздо больше, чем в Pt, что объясняется разницей в теплопроводности материалов, кратной двадцати

В оригинальном эксперименте при облучении током 10 мкА установился тепловой баланс, в результате чего температура мишени была постоянной, однако после увеличения тока пучка до 15 мкА температура начала непрерывно увеличиваться, что, в конечном итоге, привело к её разрушению. Вероятнее всего, при достижении температур поверхности около 200 °C и выше, капли распылённой жидкости, попадая на нагретую поверхность, перестают растекаться и принимают сферическую форму. В таком состоянии капли только кратковременно и частично контактируют с поверхностью в течение всего процесса испарения. По мере дальнейшего увеличения температуры, время контакта капель с поверхностью и их способность смачивать поверхность уменьшаются ещё больше, а время полного испарения увеличивается. Это приводит к образованию парового слоя между жидкостью и нагретой поверхностью. В литературе этот феномен известен как испарение жидкости в сфероидальном состоянии или эффект Лейденфроста [95; 96].

Кроме того, так как слой TeO₂ находится под воздействием пучка, возможность непосредственного измерения температуры отсутствует, но можно сделать косвенный вывод о критерии разрушения мишени, состоящий в следующем. По окончании эксперимента мишенное вещество отслоилось не полностью, а только в местах локального перегрева, там, где температура превысила температуру плавления TeO₂. Это произошло из-за неравномерного нагрева, так как несмотря на все попытки изменить профиль пучка в сторону уменьшения плотности тепловыделения, сделать его идеальным по всему объёму не представляется возможным. Также невозможно и предсказание такого перегрева средствами математического моделирования. Однако нами была оценена средняя температура слоя TeO₂, при котором мишень остаётся целой. Исходя из результатов расчёта, температура 130-150 °C является максимальной, при которой не происходит разрушение мишени.

4.2 Исследование режимов охлаждения оксидной мишени при производстве изотопов йода

Результаты экспериментов по охлаждению передней стороны оксидной мишени положим в основу математической модели производственной наработки йода на циклотроне Р7М и проведём сравнение эффективности трех способов переднего охлаждения: потоком воздуха, реализованного на циклотроне Р7М [13], потоком гелия мишенного узла Nirta Solid IBA [18] и разработанной системой мелкодисперсного распыления жидкости.

Для сравнения эффективности теплоотвода различными способами в программе COMSOL была создана модель мишени из ¹²²TeO₂, используемая для производства изотопа ¹²³I. В ходе моделирования предусматривалось облучение мишени пучком дейтронов с энергией 13,6 МэВ, током пучка 40 мкА, при этом общая тепловая мощность составила 544 Вт. Потери энергии дейтронов в слоях мишени и распределение мощности тепловыделения были рассчитаны с использованием программы SRIM. Как отмечалось в разделе 1.5.1, при прохождении через вещество оксида дейтроны теряют энергию нелинейно. Это приводит к тому, что в слоях мишени, расположенных ближе к середине и подложке, происходит большее тепловыделение по сравнению с поверхностью. Именно поэтому важно учитывать тепловыделение для каждого отдельного слоя TeO₂ (табл. 11).

Таблица 11 — Потери энергии и тепловыделение в TeO₂ послойно с учетом переднего газового охлаждения

	Слой 1 (50 мкм)	Слой 2 (50 мкм)	Слой 3 (56 мкм)
Потеря энергии в слое, МэВ	1,22	1,33	1,45
Тепловыделение в слое, Вт	49	53	58

Общее тепловыделение в мишени представлено в табл. 12. В циклотроне Р7М выходящий из камеры пучок проходит поочерёдно оконную фольгу, отделяющую вакуум от атмосферы (сплав Be-Al), слой теплоносителя, охлаждающего переднюю поверхность мишени, мишенное вещество TeO₂ и полностью поглощается в Pt

подложке (рис. 4.6, 4.5).

Как было описано в главе 1, одним из способов улучшения термической стабильности мишени является её поворот на угол sin φ по отношению к пучку. При повороте проекция пучка заряженных частиц на мишень принимает эллиптическую форму и площадь облучаемой поверхности увеличивается в 1/sin φ раз, что снижает поверхностную плотность тепловыделения. В этом случае возможно пропорциональное уменьшение толщины слоя материала мишени с 180 до 156 мкм с сохранением пробега и потерь энергии пучка, как и при 90° геометрии.

Таблица 12 — Параметры потери энергии и тепловыделения при переднем газовом охлаждении (воздух/гелий) и 60° геометрии облучения

Материал	Be-Al	Воздух/гелий	TeO ₂	Pt
Толщина, мм	0,05	20	0,156	0,29
Диаметр, мм	42	35	22	35
Потеря энергии,	0,6	0,18	4	9
МэВ				
Снижение энергии, МэВ	13,6→13	13→12,8	12,8→8,85	8,85→0
Материал	Be-Al	Воздух/гелий	TeO ₂	Pt
Тепловыделение, Вт	22	7	160	355



Рисунок 4.5 — Снижение энергии пучка дейтронов по толщине при газовом охлаждении передней стороны мишени. 1 – Be-Al, 2 – TeO₂, 3 – Pt.



Рисунок 4.6 — Тепловыделение в фольге и в слоях мишени. 1 – Be-Al, 2 – TeO₂, 3 – Pt.

В среде COMSOL была смоделирована упрощённая геометрия узла мишени (рис. 4.7) и заданы граничные условия. При создании модели был допущен ряд упрощений. Во-первых, слой TeO₂ имел одинаковую толщину по всей своей площади, а адгезия между оксидом и подложкой принята идеальной. Во-вторых, переднее охлаждение потоком газа и заднее охлаждение потоком воды принималось равномерным по всей поверхности теплообмена.



Рисунок 4.7 — Геометрия мишени. 1 – TeO₂, 2 – Pt. Облучаемое вещество мишени (TeO₂) расположено в углублении 0,145 мм платинового тигля.

Теплопроводность в твёрдых телах рассчитывается аналогично разделу 4.1 через уравнение теплопроводности (4.4) для стационарного случая. Задание объёмного тепловыделения при гауссовском распределении плотности пучка циклотрона, производилось модулем Deposited Beam Power и типом распределения плотности Top-hat. Исходя из динамики пучка циклотрона P7M TПУ, радиус пучка R выбран равным 6 мм и размер переходной зоны сглаживания $\delta R = 6$ мм, что соответствует скруглённому профилю (разрывный цилиндрический пучок), плоскость мишени находится под углом 60° к пучку.

Процесс переноса теплоты между поверхностью твёрдого тела и жидкой средой называется конвекцией. Данный тип теплопередачи возможен только в текучей среде, где перенос теплоты непосредственно связан с переносом самой среды. По характеру движения различают естественную и вынужденную конвекцию. Вынужденная конвекция создаётся внешним воздействием (насос, вентилятор), естественная конвекция возникает за счёт разности плотностей холодных и нагретых частиц жидкости. Исходя из этого существует 2 типа течения: турбулентное (возмущённое, вихревое) и ламинарное (спокойное, струйчатое). Изменение режима движения происходит при некоторой «критической» скорости, которая в каждом конкретном случае различна.

В данном моделируемом случае конвективное охлаждение реализовано продольным омыванием водой задней части мишени (Pt подложка) и поперечным омыванием воздухом/гелием передней части (TeO₂). В обоих случаях движение теплоносителя вынужденное и интенсивность теплоотвода определяется коэффициентом теплоотдачи h, который находится с помощью критериев подобия и уравнения Ньютона-Рихмана (4.7).

Критерии подобия являются безразмерными характеристиками, которые характеризуют отношения физических эффектов согласно теории подобия. К определяемым критериям подобия для конвективного теплообмена относят следующие безразмерные величины [92].

Число Рейнольдса, определяющее гидромеханическое подобие течения теплоносителя:

87

$$Re = \frac{\varpi_0 l}{\upsilon} \tag{4.8}$$

где q – тепловой поток через границу теплообмена, Вт·м⁻²;

ω₀ – характерная скорость жидкости или газа;

l – характерный геометрический размер;

v – кинематический коэффициент вязкости теплоносителя

Число Рейнольдса выражает отношение сил инерции к силам вязкости трения. При малых числах Re преобладают силы вязкости и режим течения ламинарный. Турбулентный режим начинается при Re ≥ 5.10⁵, когда в потоке начинают преобладать силы инерции и интенсивно развиваться завихрения.

Число Прандтля, являющиеся теплофизической характеристикой хладогента, численные значения которого приводятся в таблицах:

$$Pr = \frac{C_p \mu}{\lambda} \text{ или } Pr = \frac{v}{h} \tag{4.9}$$

Число Нуссельта, являющееся определяемым в процессах конвективного теплообмена и характеризующее его интенсивность:

$$Nu = \frac{hl}{\lambda}$$
, где (4.10)

h – коэффициент теплоотдачи, Вт·м⁻²·K⁻¹;

l – характерный геометрический размер, м;

 λ – коэффициент теплопроводности теплоносителя, Вт·м⁻¹·K⁻¹.

Приведенные выше критерии подобия используются в среде COMSOL Multiphysics и позволяют вычислить коэффициент h исходя из скорости и геометрии потока [91]:

$$h = \begin{cases} 2\frac{k}{L} \frac{0.3387Pr^{1/3}Re_{L}^{1/2}}{\left(1 + \left(\frac{0.0468}{Pr}\right)^{2/3}\right)^{1/4}} \operatorname{при} Re_{L} \le 5 \cdot 10^{5} \\ 2\frac{k}{L}Pr^{1/3}\left(0.037Re_{L}^{4/5} - 871\right) \operatorname{прu} Re_{L} > 5 \cdot 10^{5} \end{cases}$$
(4.11)

где k – коэффициент теплопроводности теплоносителя, $BT \cdot M^{-1} \cdot K^{-1}$;

L – характерный размер омываемой поверхности, м;

Re-число Рейнольдса;

Pr – число Прандтля.

Из уравнения Ньютона-Рихмана (4.7) определяется интенсивность теплоотвода.

Сетка решения тепловой задачи задавалась встроенным узлом physiccontrolled mesh с размером элементов extremely fine (рис. 4.8). Для исследования устойчивости решения производился расчёт с постепенным увеличением количества узлов сетки, во всех случаях сходимость результатов решения достигала уровня 10^{-3} .



Рисунок 4.8 — Графическое представление исследуемого объекта вместе с расчётной сеткой, используемой для численного моделирования

Моделировались три типа охлаждения, в каждом из которых мишень повёрнута на угол 60° относительно направления пучка.

Таким образом, граничные условия следующие.

- 1. Переднее охлаждение воздух/гелий:
 - тепловыделение в слое TeO₂: 160 Вт;
 - тепловыделение в Pt подложке: 355 Вт;
 - скорость газового теплоносителя, охлаждающего переднюю поверхность мишени (слой TeO₂): 35 м/с, 5 атм;
 - скорость водяной струи, охлаждающей заднюю поверхность мишени (Рt подложка): 10 м/с.

- 2. Переднее охлаждение мелкодисперсно распылённая вода:
 - тепловыделение в слое TeO₂: 177 Вт;
 - тепловыделение в Pt подложке: 281 Вт;
 - коэффициент теплоотдачи при охлаждении передней поверхности мишени (слой TeO₂): 9 500 Вт·м⁻¹·К⁻¹;
 - скорость водяной струи, охлаждающей заднюю поверхность мишени (Рt подложка): 10 м/с.

Результаты комбинированного охлаждения воздух+вода и гелий+вода представлены в таблице 13.

Таблица 13 — Результаты моделирования для системы охлаждения газ+вода

Параметр	Воздух	Гелий
Мах температура вещества мишени, °С	139,5	137,0
Средняя температура поверхности мишени, °С	123,84	121,64
Средний коэффициент теплоотдачи на передней	262,3	540,25
поверхности мишени, Вт·м ⁻¹ ·К ⁻¹		
Средний коэффициент теплоотдачи на задней поверхности	23 315	23 288
мишени, Вт·м ⁻¹ ·К ⁻¹		

Несмотря на больший коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени при охлаждении гелием, по сравнению с воздухом, максимальная температура мишени отличается незначительно (121,64 против 123,84 °C). Кроме того, используя уравнение (4.7) 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.

При моделировании двухстороннего водяного охлаждения задний теплообмен представлен омыванием Pt подложки водяной струёй со скоростью 10 м/с, а для переднего охлаждения применялся коэффициент теплоотдачи, полученный в разделе 4.1. Для максимального приближения математической модели к реальному производству йода, геометрия мишени была такой же, как и в эксперименте, описанном в главе 3. Таким образом, коэффициент теплоотдачи, определенный из описанного эксперимента, применяется для такой же площади поверхности конвективного охлаждения. В проведённом эксперименте охлаждение было односторонним и весь поток тепла передавался распылённой воде, в то время как в моделируемом случае охлаждение двухстороннее и тепло, от которого зависит коэффициент теплоотдачи в соответствии с формулой 4.7 распределяется по двум сторонам мишени. При этом, температура поверхности слоя TeO_2 , а значит и разница температур ΔT может меняться, что, изменяет конвективный коэффициент h за счёт интенсификации либо редукции процессов фазовых переходов. Таким образом, коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени со значением 9 500 Вт·м⁻²·K⁻¹ применяется для расчётов с указанными оговорками.

Так как в случае использования мелкодисперсного распыления перед TeO₂ появляется слой воды, то профиль потерь энергии и тепловыделения в слоях мишени несколько поменяется (табл. 14, рис. 4.9 и 4.10).

Таблица 14 — Параметры потери энергии и тепловыделения при двойном водяном охлаждении и 90° геометрии облучения

Материал	Be-Al	Воздух	Вода	TeO ₂	Pt
Толщина, мм	0,05	20	0,2	0,156	0,29
Диаметр, мм	42	35	35	22	35
Потеря энергии, МэВ	0,6	1,37	1,37	4,42	9
Снижение энергии, МэВ	13,6→13	13→12,8	12,8→11,5	11,5→7	7→0
Тепловыделение, Вт	22	9	55	177	281



Рисунок 4.9 — Снижение энергии пучка дейтронов по толщине при водяном охлаждении передней стороны мишени. 1 – Be-Al, 2 – вода, 3 - TeO₂, 4 – Pt.



Рисунок 4.10 — Тепловыделение в фольге и в слоях мишени. 1 – Be-Al, 2 – вода, 3 - TeO₂, 4 – Pt.

Таблица 15 — Потери энергии и тепловыделение в TeO₂ послойно с учетом переднего водяного охлаждения

	Слой 1 (50 мкм)	Слой 2 (50 мкм)	Слой 3 (56 мкм)
Потеря энергии в слое, МэВ	1,15	1,3	1,96
Тепловыделение в слое, Вт	46	52	79

Результаты переднего охлаждения распылённой водой и заднего охлаждения струёй воды представлены в таблице 16.

Таблица 16 — Результаты моделирования для системы вода+вода

Max	температура	Средний коэффициент	Средний коэффициент
мишени, °С		теплоотдачи на	теплоотдачи на задней
		передней поверхности	поверхности мишени,
		мишени, Вт·м ⁻² ·К ⁻¹	$Bt \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
92,7		9 500	22 263

Сравнительный градиент температуры в мишени при использовании нескольких способов охлаждения показан на рис. 4.11.



Рисунок 4.11 — Сравнение градиентов температур при облучении мишени из TeO₂+Pt и охлаждении различными способами. В левой четверти рисунка (толщина < 0,156 мм) - слой TeO₂

При использовании воздушного охлаждения для слоя TeO2 максимальная температура наблюдается на передней поверхности мишени. Это связано с низким коэффициентом теплоотдачи воздуха, который не позволяет эффективно отводить тепло от передней части мишени, где энергия дейтронов начинает поглощаться материалом. В отличие от этого, при охлаждении распылёнными каплями жидкости более Благодаря тепловыделение распределяется равномерно. высокой интенсивности теплообмена при капельном охлаждении, максимум температуры смещается к центру слоя TeO₂. Это связано с более эффективным отводом тепла, начиная с поверхности мишени и углубляясь внутрь материала. В результате наблюдается значительное снижение температурного перепада по сравнению с охлаждением газом. Такая более равномерная температура по толщине слоя помогает избежать температурных деформаций и повреждений, улучшая общую стабильность и эффективность охлаждения мишени.

Дополнительно исследована зависимость температуры максимального разогрева мишени для различных значений, подводимой пучком дейтронов тепловой мощности при двойном водяном охлаждении (рис. 4.12).

4.3 Применение технологии охлаждения передней стороны для мишеней с низкими теплопроводящими свойствами

Возможность охлаждения разработанным способом не ограничивается только TeO₂ мишенями. В настоящее время для производства изотопов на ускорителях используется целый ряд как оксидных, так и металлических мишеней с плохими теплопроводящими свойствами (табл. 17). Данные мишени облучаются на выведенном в канал пучке, вне вакуума, соответственно, каждая такая мишень требует переднего охлаждения.

Изотоп	Материал мишени	Форма	
	ПЭТ нуклиды		
⁶⁴ Cu	⁶⁴ Ni	Металл	
⁶⁶ Ga	⁶⁶ Zn	Металл	
⁷⁶ Br	⁷⁶ Se	Металл	
		Селенид	
⁸⁶ Y	⁸⁶ Sr	Карбонат	
⁸⁹ Zr	⁸⁶ Sr	Металл	
^{99m} Tc	¹⁰⁰ Mo	Металл	
⁴⁴ Sc	⁴⁴ Ca	Оксид	
ОФЭКТ нуклиды			
⁶⁷ Ga	⁶⁷ Zn	Металл	
¹¹¹ In	¹¹¹ Cd	Металл	

Таблица 17 — Мишени и мишенные материалы для облучения на воздухе [97—101]

Помимо изотопов, указанных выше, на циклотроне Р7М ТПУ разрабатывается технология производства ¹⁸⁶Re, для чего мишень из WO₃ облучают пучком дейтронов с энергией 13,6 МэВ. Оксидная вольфрамовая мишень (рис. 4.12) представляет собой спрессованный либо спечённый порошок, расположенный в металлической подложке и закрытый Ве фольгой со стороны пучка. Из-за низкой теплопроводности оксида рабочий ток составляет значение 10 мкА, что не позволяет производить перспективный ¹⁸⁶Re в промышленных количествах.



Рисунок 4.12 — Мишень из WO₃ в мишенном узле циклотрона Р7М

Помимо этого, в сферу научных интересов лаборатории входит производство ²¹¹At из ²⁰⁹Bi в виде металла [102]. Висмут, несмотря на своё металлическое происхождение, обладает низким коэффициентом теплопроводности (7,9 Вт·м⁻¹·К⁻¹ при 300 К [103]), и для его промышленного производства необходимо либо наносить очень тонкий мишенный слой, ограничивая сечение реакции, либо использовать переднее охлаждение.

Таким образом, разработанный способ переднего охлаждения позволяет решать актуальные задачи обеспечения термической стабильности различных твердотельных мишеней при производстве РФЛП на ускорителях.

4.1 Выводы по главе 4

С помощью программного пакета COMSOL Multiphysics были разработаны две физико-математические модели облучения мишени из TeO₂+Pt пучком дейтронов с начальной энергией 13,6 МэВ. Первая модель представляет собой эксперимент по испытанию нового способа и устройства охлаждения мишени на пучке циклотрона P7M. В результате моделирования был определен коэффициент теплоотдачи при мощности пучка 113 Вт, который составил 9 500 Вт·м⁻²·K⁻¹.

Во второй модели рассчитанный коэффициент теплоотдачи применяли при сравнение различных способов охлаждения передней поверхности мишени, среди которых охлаждение потоком воздуха, гелия и мелкодисперсно распылённой водой. По результатам моделирования установлено, что интенсивность теплоотвода при использовании водяного распылённого потока для охлаждения передней стороны мишени на порядок выше, чем при использовании газового теплоносителя. Это доказывает работоспособность как физико-математической модели исследования процессов охлаждения мишени при облучении потоком дейтронов, так и предложенного способа охлаждения при реализации технологии производства радионуклидов йода на циклотроне.

Заключение

В настоящее время радионуклиды на основе йода всё чаще находят применение в ядерной медицине в качестве диагностических и терапевтических РФЛП. Данные изотопы производят на циклотронах, облучая мишень из диоксида теллура, нанесённого на металлическую подложку, пучком ускоренных протонов или дейтронов. Из-за низкой теплопроводности материала мишени, отвод тепловой мощности пучка к охлаждаемой водой подложки значительно затруднён. При этом производительность наработки радиойода сильно ограничивается, так как вынужденно уменьшается ток пучка, что негативно сказывается на экономических параметрах производства. В этой связи, в диссертационной работе исследована возможность дополнительного охлаждения передней стороны мишени (слоя TeO₂) с использованием мелкодисперсного распыления жидкости.

С этой целью при выполнении диссертационной работы были решены следующие задачи: разработано и изготовлено устройство распыления жидкости с использованием ультразвуковой колебательной системы, проведены пробные испытания данного устройства на пучке циклотрона Р7М, оценена интенсивность теплоотвода кинетика охлаждения мишени с использованием И пакета моделирования COMSOL, рассчитано температурное математического поле оксидной мишени, применительно к производственным условиям наработки радиойода на циклотроне, установлены критерии термической стабильности мишени при облучении.

Результаты, полученные в процессе выполнения данной диссертационной работы, позволили сформулировать несколько выводов и рекомендаций, которые могут быть полезны для разработки мишеней и мишенных устройств с перспективой их практического использования в производстве РФЛП на циклотроне.

 Мишень, состоящая из оксидного материала, нанесённого на металлическую подложку, требует интенсивного переднего охлаждения, так как имеющий низкий коэффициент теплопроводности оксид плохо передаёт 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.
- 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.
- Результаты расчётов температурного поля твердотельной мишени в процессе облучения удовлетворительно согласуются с данными, полученными экспериментально.

Благодарности

Автор выражает благодарность сотрудникам Научной лаборатории радиоактивных веществ и технологий ТПУ за помощь в проведении экспериментов, интерпретации результатов, советы и поддержку. Также свою благодарность автор выражает своим научным руководителям: Головкову Владимиру Михайловичу за выбор темы и наставничество до своих последних дней, Кривобокову Валерию Павловичу за структурирование материала, подготовку и исправление текста диссертации, моральную поддержку и ценные советы, а также Тюрина Юрия Ивановича за помощь в написании окончательного варианта, завершении исследования и подготовке диссертации к защите.

Список сокращений и условных обозначений

- РФЛП Радиофармацевтический лекарственный препарат
- ПЭТ Позитронная эмиссионная томография
- ОФЭКТ Однофотонная эмиссионная компьютерная томография
- РН Радионуклид
- МБк Мегабеккерель
- МИБГ Мета- йодобензилгуанидин
- УЗКС Ультразвуковая колебательная система
- УЗГ Ультразвуковой генератор
- $\Pi \Im \Pi$ ьезоэлемент
- МКЭ Метод конечных элементов

Список литературы

- 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.
- 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.
- 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.
- Production of curie quantities of high purity ¹²³I with 15 MeV protons / L. Barral [et al.] // Eur. J. Nucl. Med. — 1981. — Vol. 6. — P. 411.
- Standardized high current solid targets for cyclotron production of diagnostic and therapeutic radionuclides : tech. rep. / International Atomic Energy Agency. — Vienna, 2004. — No. 432.
- 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 ⁶⁷Cu and ¹²⁴I for Radionuclide Therapy and Positron Emission Tomography // Radiochemistry. — 2005. — Vol. 47. — P. 502–509. — DOI: https://doi.org/10.1007/s11137-005-0129-z.

- Циклотрон в решении научных и практических задач. Сб. статей / под ред. В. М. Головкова. — Томск : Изд-во ТПУ, 1999. — 103 с.
- 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.
- Nye J. A., Avila-Rodriguez A. M., Nickles R. J. Production of [¹²⁴I]-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.
- Modeling of thermal properties of a TeO₂ 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.
- 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. Свирщевский Е. Б., Сошин Л. Д. Введение в ядерную медицину. Сборник Изотопы: свойства, получение, применение в 2 Т. / под ред. В. Ю. Баранова. М. : ФИЗМАТЛИТ, 2005. 728 с.
- Радиофармацевтические препараты на основе радионуклидов йода / А. С. Семенов [и др.] // Известия вузов. Физика / под ред. Национальный исследовательский Томский государственный университет (ТГУ). 2013. Т. 56, № 11/3. С. 194—200.
- 24. Наркевич Б. Я., Костылёв В. А. Физические основы ядерной медицины. М.
 : АМФ-Пресс, 2001. 60 с.
- Национальное руководство по радионуклидной диагностике / под ред. Ю. Б. Лишманова, В. И. Чернова. Т.1. Томск : STT, 2010. 290 с.
- 26. *Скуридин В. С.* Методы и технологии получения радиофармпрепаратов: учебное пособие. — Томск : Изд-во ТПУ, 2012. — 139 с.
- 27. Al-Yanbawi S., Al Jammaz I. Some optimization studies relevant to the production of high-purity ¹²⁴I and ^{120g}I at a small-sized cyclotron // Applied Radiation and Isotopes. 2003. Vol. 58, issue 1. P. 69–78. DOI: https://doi.org/10.1016/S0969-8043(02)00226-9.
- IAEA. Medical Radioisotopes Production Portal [Электронный ресурс]. URL: https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/MEDVChart.html (дата обр. 04.10.2023).
- 29. Возможность повышения наработки ¹²³І на циклотроне НИЦ Курчатовский институт / В. А. Загрядский [и др.] // Атомная энергия. 2021. Т. 131, № 2. С. 84—89.
- Немец О. Ф., Гофман Ю. В. Справочник по ядерной физике. Киев : Издательство "Наукова думка", 1975. — 417 с.
- Применение циклотрона МГЦ-20 Радиевого института для производства изотопов / Л. М. Солин [и др.] // 17-е совещ. по ускорит. заряж. част. Т. 1. — Протвино, 2000.
- Тихомиров А. В., Халкин В. А. Способ получения радионуклида йод-123: А.с. 1597005 SU. — 1988.

- Алексеев Ф. Е., Гребенщиков Н. Р., Селицкий Ю. А. Производство ¹²³I с помощью малогабаритного циклотрона и синтез радиофармпрепарата Na¹²³I // Препринт РИАН им. В.Г. Хлопина. — М., 1991.
- 34. Семенов А. С. Разработка методов получения радиофармацевтических лекарственных препаратов на основе ¹²³І для медицинской диагностики: дис. на соискание ученой степени кандидата технических наук: спец. 2.6.8. Томский политехнический университет (ТПУ), Томск., 2022. 165 с.
- 35. Deuteron induced reactions on tellurium: An alternative for production of ¹²³I? / A. Hermanne [et al.] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. —
 2020. Vol. 466. P. 20–30. DOI: https://doi.org/10.1016/j.nimb.2019.11.040.
- 36. ¹²⁴Iodine: A Longer-Life Positron Emitter Isotope—New Opportunities in Molecular Imaging / G. L. Cascini [et al.] // BioMed Research International. — 2014. — P. 1–7. — DOI: http://dx.doi.org/10.1155/2014/ 672094.
- 37. Radionuclide and radiation protection data handbook / D. Delacroix [et al.]; ed. by
 2. Edition. Ashford, England : Nuclear Technology Publishing, 2002. 168 p.
 ISBN 1473-6691.
- Салодкин С. С., Головков В. М. Получение радионуклида йода-124 на циклотроне // Известия вузов. Физика / под ред. Национальный исследовательский Томский государственный университет (ТГУ). — 2019. — Т. 62, 12 (744). — С. 171—177. — DOI: https://doi.org/10.17223/00213411/62/12/171.
- 39. Салодкин С. С., Головков В. М. Получение йода-124 по реакции (d, 2n) на циклотроне Р7М для ядерной медицины // Известия вузов. Физика / под ред. Национальный исследовательский Томский государственный университет (ТГУ). — 2017. — Т. 60, № 9/2. — С. 102—105.
- 40. Development of a Large-Scale Iodine-125 Production System at UC Davis/MNRC
 / M. Boussoufi [et al.] // Reactor Production of Medical Isotopes. 2008. P. 905–906.

- 41. Ertl H. H., Feinendegen L. E., Heiniger H. J. Iodine-125, a Tracer in Cell Biology: Physical Properties and Biological Aspects // PHPS. MED. BIOL. — 1970. — Vol. 15, no. 3. — P. 447–456.
- 42. Investigation of the production routes of Palladium-103 and Iodine-125 radioisotopes / Y. A. 'Unc'u [et al.] // Radiation Physics and Chemistry. 2023. Vol. 204. P. 1–6. DOI: <u>https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2022.110658</u>.
- Cyclotron produced radionuclides: physical characteristics and production methods: tech. rep. / International Atomic Energy Agency. — Vienna, 2009. — No. 279.
- 44. Nuclear Medicine Physics / ed. by J. J. Pedroso de Lima. USA : Taylor, Francis Group, 2011. 522 p. ISBN 978-1-58488-796-6.
- 45. Handbook of Radiopharmaceuticals. Radiochemistry and Applications / ed. by M.
 J. Welch, C. S. Redvanly. Ashford, England : Wiley, 2003. 863 p.
- 46. Черняев А. П. Ионизирующие излучения. 3-е изд., испр. и дополн. М. : ИД КДУ, 2014. 314 с.
- 47. Кузьменко А. Л. Справочник по общей и неорганической химии. Минск : Издательство "Вышэйш. школа", 1974. 144 с.
- 48. Харин А. Н., Катаева И. А., Харина Л. Т. Курс химии: учебник для приборостроит. спец. вузов / под ред. А. Н. Харина. М. : Высш. школа, 1983. 511 с.
- Cyclotron produced radionuclides: principles and practice : tech. rep. / International Atomic Energy Agency. — Vienna, 2008. — No. 465.
- 50. Мухин К. Н. Введение в ядерную физику. М. : Атомиздат, 1965. 720 с.
- Марченков Н. С. Получение радионуклидов на ускорителях заряженных частиц. Сборник Изотопы: свойства, получение, применение. / под ред. В. Ю. Баранова. — М. : ИздАТ, 2000. — 704 с.
- Стоун Д. Р., Карон П. Э. Теллур. Справочник по редким металлам. Перевод с английского / под ред. В. Е. Плющева. — М. : Издательство "Мир", 1965. — 931 с.
- 53. *Al-Yanbawi S.*, *Al Jammaz I.* Standardized high current solid tellurium-124 target for cyclotron production of the radionuclides iodine-123,124 // Radiochim. Acta. –

2007. – Nov. – No. 95. – P. 657–661. – DOI: https://doi.org/10.1524/ract.2007.95.11.657.

- 54. Fast recovery by dry distillation of ⁷⁵Br induced in reusable metal selenide targets via the ⁷⁶Se(p,2n)⁷⁵Br reaction / W. Vaalburg [et al.] // The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. 1985. Vol. 36, no. 12. P. 961–964. DOI: https://doi.org/10.1016/0020-708X(85)90256-X.
- 55. Intermetallic compounds of cobalt as targets for the production of theranostic radionuclides: patent no. US2022/0220586 / P. A. Ellison [et al.]. 2022.
- 56. Hansen M., Anderko K., Salzberg H. W. Constitution of Binary Alloys // Journal of The Electrochemical Society. — 1958. — Vol. 105, no. 12. — DOI: https://doi.org/10.1149/1.2428700.
- 57. A new binary compound for the production of ¹²⁴I via the ¹²⁴Te(p,n) ¹²⁴I reaction / J.
 A. Nye [et al.] // Applied Radiation and Isotopes. 2007. Vol. 65, issue 4. —
 P. 407–412. DOI: https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.10.012.
- Nye J. A., Nickles R. J. Systems and methods for the cyclotron production of iodine-124: patent US2007/0064858. — 2007.
- 59. Савинкина Е. В., Михайлов В. А., Киселёв Ю. М. Общая и неорганическая химия: в 2 т. Т.1: Законы и концепции / под ред. А. Ю. Цивадзе. М. : Лаборатория Знаний, 2022. 491 с.
- 60. Synthesis, thermal and structural properties of pure TeO₂ glass and zinc-tellurite glasses / N. S. Tagiara [et al.] // Journal of Non-Crystalline Solids. 2017. Vol. 457. P. 169–174. DOI: https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2016.11.033.
- 61. Structure of TeO₂ glass: Results from 2D ¹²⁵Te NMR spectroscopy / M. A. T. Marple [et al.] // Journal of Non-Crystalline Solids. 2019. Vol. 457. P. 1– 31. DOI: http://dx.doi.org/10.1016/j.jnoncrysol. 2019.03.019.
- 62. Гарапацкий А. А., Троян П. Е. Исследование адгезионного слоя плёнки TeO₂ с индентированной платиновой подложкой после радиационной нагрузки дейтронами 13 МэВ // 9-ая Международная конференция «Взаимодействие излучений с твёрдым телом». Минск, Беларусь, 2011.
- 63. Thick tellurium electrodeposition on nickel-coated copper substrate for ¹²⁴I

production / M. Sadeghi [et al.] // Applied Radiation and Isotopes. — 2008. — Vol. 66 (10). — P. 1281–1286. — DOI: https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2008.02.082.

- 64. Production of ¹²⁴I for positron emission tomography / H. L. Sharma [et al.] // Journal of Labelled Compounds and Radiophatmaceuticals. 1989. Vol. 26. P. 165–167. DOI: https://doi.org/10.1002/jlcr.2580260171.
- 65. Investigation of I-124, Br-76, and Br-77 production using a small biomedical cyclotron Can induction furnaces help in the preparation and separation of targets?
 / T. J. McCarthy [et al.] // In Proceedings of the 8th Workshop on Targetry and Target Chemistry. St. Louis, MO, USA, 23–26 June 1999.
- 66. Conventional and induction furnace distillation procedures for the routine production of Br-76,77 and I-124 on disk and slanted targets. / D. J. Rowland [et al.]
 // Journal of Labelled Compounds and Radiophatmaceuticals. 2012. Vol. 44.
 P. 1059–1060. DOI: https://doi.org/10.1002/jlcr.25804401378.
- 67. Knust E. J., Weinreich R. Yields and impurities in several production reactions for ¹²⁴I // In Proceedings of the 7th Workshop on Targetry and Target Chemistry. Heidelberg, Germany, 8–11 June 1997.
- 68. Weinreich R., Knust E. Quality assurance of iodine-124 produced via the nuclear reaction ¹²⁴Te(d,2n)¹²⁴I // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters. 1996. Vol. 213. P. 253–261. DOI: https://doi.org/10.1007/BF02163571.
- 69. Knust E., Dutschka K., Weinreich R. Preparation of ¹²⁴I solutions after thermodistillation of irradiated ¹²⁴TeO₂ targets // Applied Radiation and Isotopes. 2000. Vol. 52. P. 181–184. DOI: https://doi.org/10. 1016/S0969-8043(99)00127-X.
- 70. I-124 And Its Applications in Nuclear Medicine and Biology / R. Weinreich [et al.]
 // In Proceedings of the International Symposium on Modern Trends in Radiopharmaceuticals for Diagnosis and Therapy. — Lisbon, Portugal, 30 March– 3 April 1998.
- On-line production of radioiodines with low energy accelerators / N. R. Stevenson [et al.] // In Proceedings of the 6th Workshop on Targetry and Target Chemistry. Vancouver, BC, Canada, 17–19 August 1995.

- Физико-химические свойства окислов / Г. В. Самсонов [и др.]. М. : Металлургия, 1978. — 474 с.
- 73. Платина, ее сплавы и композиционные материалы / Е. В. Васильева [и др.]. —
 М. : Металлургия, 1980. 289 с.
- 74. Абрамович Б. Г., Гольдштейн В. Л. Интенсификация теплообмена излучением с помощью покрытий. М. : Энергия, 1977. 250 с.
- 75. Short-Range Disorder in TeO₂ Melt and Glass / O. L. G. Alderman [et al.] // The Journal of Physical Chemistry Letters. 2020. Vol. 11 (2). P. 427–431. DOI: https://doi.org/10.1021/acs.jpclett.9b03231.
- Dwivedi S. K., Vishwakarma M. Hydrogen embrittlement in different materials: A review // International Journal of Hydrogen Energy. 2018. Vol. 43. P. 21603–21616. DOI: https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2018.09.201.
- 77. Баскаков А. П., Берг Б. В., Витт О. К. Теплотехника: учеб. для вузов / под ред.
 А. П. Баскакова. М. : Энергоатомиздат, 1991. 224 с.
- Варгафтик Н. Б. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. — М. : Издательство "Наука", 1972. — 720 с.
- 79. Разработка и исследование новых принципов построения мелкодисперсных ультразвуковых распылителей вязких жидкостей / В. Н. Хмелев [и др.] // Известия Томского политехнического университета. 2011. Т. 319, № 4. С. 158—163.
- Ультразвук. Аппараты и технологии / В. Н. Хмелев [и др.]. Бийск : Изд-во Алт. гос. техн. ун-та, 2015. — 687 с.
- 81. Проектирование пьезоэлектрических ультразвуковых колебательных систем /
 В. Н. Хмелев [и др.] // Ползуновский вестник. 2013. № 2. С. 119—123.
- Источники ультразвукового воздействия. Особенности построения и конструкции / В. Н. Хмелев [и др.]. Бийск : Изд-во Алт. гос. техн. ун-та, 2013. 196 с.
- 83. Хмелев В. Н., Хмелев С. С., Левин С. В. Особенности расчёта концентраторов ультразвуковых колебаний с крепёжным пояском // Южно-сибирский научный вестник. — 2015. — 2 (10). — С. 17—20.
- 84. Влияние стягивающих и соединительных шпилек на параметры преобразователя Ланжевена / В. Н. Хмелев [и др.] // Южно-сибирский научный вестник. 2003. № 3. С. 67—71.
- 85. Хмелев В. Н., Цыганок С. Н., Лебедев А. Н. Исследование и разработка полуволновых пьезоэлектрических ультразвуковых колебательных систем // Ползуновский вестник. — 2006. — № 2. — С. 170—176.
- 86. *Хмелев В. Н., Барсуков Р. В., Ильченко Е. В.* Принципы построения и пути развития ультразвуковых электронных генераторов // Южно-сибирский научный вестник. 2016. Т. 16, № 4. С. 35—38. DOI: https://doi.org/10.1016/j.nima.2003.11.147.
- 87. Измерение размеров капель жидкости, получаемых при различных ре- жимах работы ультразвуковых распылителей / В. Н. Хмелев [и др.] // Ползуновский вестник. 2012. № 3/2. С. 179—184.
- Шалунова А. В., Хмелев В. Н., Шалунов А. В. Методика расчёта геометрических параметров ультразвукового распылителя // Современные проблемы радиоэлектроники: Сборник научных трудов / под ред. А. Громыко. — Красноярск, 2009. — С. 235—238.
- 89. Комиссаров Ю. А., Гордеев Л. С., Вент Д. П. Процессы и аппараты химической технологии в 5 ч. Часть 3: учебник для академического бакалавриата / под ред. Ю. А. Комиссарова. М. : Издательство Юрайт, 2018. 247 с.
- 90. Ziegler J. F., Ziegler M. D., Biersack J. P. SRIM The stopping and range of ions in matter // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 2010. Vol. 268. P. 1818–1823. DOI: https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- 91. Heat Transfer Module. User's Guide / COMSOL. USA, 1998–2018.
- 92. Михеев М. А., Михеева И. М. Основы теплопередачи. Изд. 2-е, стерео-тип. М. : Энергия, 1977. 344 с.
- Нащокин В. В. Техническая термодинамика и теплопередача. Учебн. пособие для неэнергетических специальностей вузов. М. : Высшая школа, 1975. 496 с.
- 94. Овсянник А. В. Моделирование процессов теплообмена при кипении

жидкостей. — Гомель : ГГТУ им. П. О. Сухого, 2012. — 284 с.

- 95. Буевич Ю. А., Манкевич В. Н. К теории явления Лейденфроста // Теплофизика высоких температур. — 1982. — Т. 20, № 6. — С. 1136—1144.
- 96. Кутателадзе С. С. Основы теории теплообмена. Москва : Атомиздат, 1979.
 416 с.
- 97. Nirta Solid target for Cyclone 18 Technical data sheet / IBA. Louvain- la-Neuve, Belgium, 2008.
- 98. Dabkowski A. M., Probst K., Marshall C. Cyclotron production for the radiometal Zirconium-89 with an IBA cyclone 18/9 and COSTIS solid target system (STS) // 14th international workshop on targetry and target chemistry. 2012. P. 108–113. DOI: https://doi.org/10.1063/1.4773950.
- 99. Automated production of ¹²⁴I and ⁶⁴Cu using IBA Terimo and Pinctada metal electroplating and processing modules / S. S. Poniger [et al.] // 14th international workshop on targetry and target chemistry. 2012. P. 114–119. DOI: https://doi.org/10.1063/1.4773951.
- 100. Developments toward the Implementation of ⁴⁴Sc Production at a Medical Cyclotron / N. P. Van der Meulen [et al.] // Molecules. 2020. Vol. 25(20). P. 1–16. DOI: https://doi.org/10.3390/molecules25204706.
- 101. Optimization of ⁶⁸Ga production at an 18 MeV medical cyclotron with solid targets by means of cross-section measurement of ⁶⁶Ga, ⁶⁷Ga and ⁶⁸Ga / S. Braccini [et al.]
 // Applied Radiation and Isotopes. 2022. Vol. 186. DOI: https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2022.110252.
- 102. Головков В. М. О перспективах получения альфа-излучающих нуклидов на циклотронном комплексе Томского политехнического университета // Вестник науки Сибири. — 2011. — 1(1). — С. 59—62.
- 103. Бабичев А. П., Бабушкина А. М., Братковский А. М. Физические вели-чины: справочник / под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова. — М. : Энергоатомиздат, 1991. — 1232 с.

Список рисунков

1.1 — Общая схема получения циклотронных радионуклидов и их РФЛП 17
1.2—Зависимость сечения (а) и выхода реакции ¹²⁰ Те(p,n) ¹²⁰ І (б) от энергии
протонов
1.3 — Зависимость сечения реакции 123 Te(p,n) 123 I (a) и 122 Te(d,n) 123 I (б) от энергии
заряженных частиц
1.4 — Зависимость сечения реакции 124 Te(p,n) 124 I (a) и 124 Te (d,2n) 124 I (б) от энергии
заряженных частиц
1.5 — Зависимость сечения реакции ¹²⁶ Te(p,2n) ¹²⁵ I от энергии протонов 23
1.6 — График зависимости между нарабатываемой активностью и скоростью
производства радионуклида в единицах его периода полураспада
1.7 — Зависимость dE/dx от пробега частицы (кривая Брэгга) 28
1.8 — Общий вид устройства для гальванического нанесения металла на подложку
1.9 — Мишень из металлического Те, созданная с помощью электроосаждения 36
1.10 — Мишень Al ₂ Te ₃
1.11 — Мишень TeO ₂ . а) - передняя часть мишени (слой TeO ₂) б) - задняя часть 40
1.12 — Фото сгоревших мишеней. Здесь жёлтое вещество – TeO2, коричневое –
произведённый йод, белое – отслоившийся оксид
1.13 — Профили пучков, проходящих через коллиматор диаметром 20 см с
различными гауссовскими распределениями
1.14 — Круговое колебание пучка во время облучения. Здесь R _w – радиус круговых
колебаний, R – радиус цилиндрического коллиматора 46
1.15 — Схема мишенного узла для облучения мишени TeO ₂
1.16 — Мишенный узел COSTIS 49
2.1 — Система мелкодисперсного распыления жидкости; (1) - перистальтический
насос, (2) - ультразвуковой генератор (УЗГ), (3) - ультразвуковая колебательная
система частотой 22 кГц (УЗКС) 53
2.2 — Составные части УЗКС

2.3 — Общий вид составного ступенчато-радиального концентратора [81] 56
2.4 — Диаграмма расчёта концентраторов 57
2.5 — Общий вид составного ступенчато-радиального концентратора с крепежным
пояском
2.6 — Рабочий инструмент УЗКС 60
2.7 — Внешний вид УЗКС 22 кГц 61
2.8 — УЗГ-100
2.9 — Подключение УЗКС к УЗГ
3.1 — Мишень TeO ₂ , нанесённого на Pt подложку 67
3.2 — Схема эксперимента
3.3 — Изменение величины удельных потерь энергии и мощности тепловыделения по
толщине двухслойной мишени (толщина $TeO_2 - 0,083$ мм, толщина $Pt - 0,29$ мм) 70
3.4 — Изменение температуры мишени TeO2 во времени при подводимой пучком d
тепловой мощности 116,9 Вт и охлаждении потоком мелкодисперсно распылённой
воды с использованием УЗКС при расходе воды 0,25 мл/с
3.5 — Изменение температуры мишени TeO2 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/с72
4.1 — 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
4.2 — Графическое представление исследуемого объекта вместе с расчётной сеткой,
используемой для численного моделирования
4.3 — Температурное поле мишени при интенсивности теплоотвода 9 500 Вт·м ⁻² ·К ⁻¹ ;
а – вид спереди, б – вид сзади. Максимальная температура наблюдается в Pt подложке
(рис. 4.3 б)
4.4 — Изменение температуры по глубине мишени $h = 9500 \text{ Bt} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$. Градиент
температуры в TeO ₂ (левая четверть рисунка Arc length <0,083 mm) гораздо больше,
чем в Pt, что объясняется разницей в теплопроводности материалов, кратной
двадцати

Список таблиц

1	Изотопы и их характеристики	21
2	Мишени для получения некоторых циклотронных	
	радионуклидов	30
3	Свойства материалов TeO ₂ и Pt	39
4	Основные параметры УЗКС	53
5	Типоразмеры концентраторов с крепёжным буртиком	56
6	Основные параметры генератора УЗГ-100	60
7	Диапазоны значений коэффициентов теплоотдачи в различных услов	іях,
	$BT/(M^2 \cdot K)$	64
8	Результаты измерений при облучении мишени ТеО2 током 10 мкА	68
9	Результаты измерений при облучении мишени TeO2 током 15 мкА	69
10	Рассчитанное значение максимальной температуры Pt в зависимости	ЭТ
	коэффициента теплоотдачи на передней поверхности мишени	78
11	Потери энергии и тепловыделение в TeO ₂ послойно с учетом передне	70
	газового охлаждения	81
12	Параметры потери энергии и тепловыделения при переднем газовом	
	охлаждении (воздух/гелий) и 90° геометрии облучения	81
13	Результаты моделирования для системы охлаждения газ+вода	87
14	Параметры потери энергии и тепловыделения при двойном	
	водяном охлаждении и 90° геометрии облучения	88
15	Потери энергии и тепловыделение в TeO ₂ послойно с учетом передне	70
	водяного охлаждения	89
16	Результаты моделирования для системы вода+вода	89
17	Мишени и мишенные материалы для облучения на воздухе	92

Приложение А

Удельные потери энергии и пробег высокоэнергетических дейтронов в ¹²²TeO₂ и Pt

Энергия,	¹²² TeO ₂		Pt	
МэВ				
	-dE/dx, МэВ/мм	Пробег, мм	-dE/dx, МэВ/мм	Пробег, мм
14	18,87	0,459	47,52	0,185
13	19,88	0,406	49,74	0,165
12	21,02	0,355	52,23	0,146
11	22,33	0,308	55,04	0,128
10	23,84	0,263	58,25	0,111
9	25,62	0,222	61,19	0,094
8	27,74	0,183	66,28	0,079
7	30,32	0,142	71,44	0,064
6	33,55	0,111	77,72	0,052
5	37,74	0,083	85,57	0,040
4	43,43	0,059	95,74	0,029
3	51,56	0,038	109,5	0,019
2	63,72	0,021	130,0	0,011
1	94,15	0,008	164,2	0,005

Приложение Б

Чертёж детали концентратор 22 кГц



Приложение В

Чертёж детали отражающая накладка со шпилькой 22 кГц



Приложение Г

Патент на изобретение способа охлаждения передней стороны твердотельной мишени при облучении пучком заряженных частиц

