

Количественная оценка теплоотвода переднего охлаждения мишени из диоксида теллура при облучении ускоренными дейтронами

© С.С. Салодкин, Ю.И. Тюрин, В.В. Сохорева

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
634050 Томск, Россия
e-mail: salodkinstepan@gmail.com

Поступило в Редакцию 23 октября 2023 г.

В окончательной рецензии 4 декабря 2023 г.

Принято к публикации 22 декабря 2023 г.

Для обеспечения максимально возможного тока пучка заряженных частиц при производстве радиофарм-препаратов на основе иода был разработан и апробирован новый способ переднего охлаждения TeO_2 -мишени. Используя экспериментальные данные о температуре мишени, полученные в ходе испытаний, была разработана математическая модель процессов облучения и охлаждения, определена интенсивность теплоотвода с использованием только переднего охлаждения, сделаны предположения о критериях разрушения TeO_2 -мишени.

Ключевые слова: ядерная медицина, радиоиод, радиофармпрепарат, диоксид теллура, циклотрон, охлаждение мишени.

DOI: 10.61011/JTF.2024.02.57089.270-23

Введение

В современной медицинской практике в качестве диагностических и терапевтических препаратов применяются сразу несколько изотопов иода (табл. 1). Производство данных изотопов происходит путем облучения мишени из TeO_2 пучком ускоренных протонов или дейтронов в циклотроне. При этом из-за одинаковой технологии производства всех изотопов иода возможно в некоторой степени „унифицированное“ техническое решение, представляющее собой систему по облучению мишеней на основе различных изотопов теллура.

В ходе процесса получения радиоизотопов на циклотроне в целях интенсификации выхода продукта стараются использовать максимально возможный ток пучка заряженных частиц. Однако высокая интенсивность облучения часто приводит к аварийным ситуациям, особенно если это касается мишенного материала с плохой теплопроводностью. Пучок заряженных частиц, проходя сквозь вещество, теряет свою энергию, по большей части — через ионизацию и возбуждение атомов. При этом в случае недостаточного теплоотвода энергия, рассеянная в виде тепла, может приводить к расплавлению и сублимации вещества. Таким образом, для предотвращения радиационных аварий необходимо применять интенсивное охлаждение мишени, стараясь при этом поддерживать высокую плотность пучка заряженных частиц, что позволит избежать фазовых превращений в веществе мишени.

Особую актуальность данная проблематика приобретает при использовании оксидных мишеней, применяемых для производства радиоактивного иода в меди-

цинских целях [1]. Такая мишень представляет собой слой TeO_2 , расплавленный на подложке из Pt. Процесс изготовления мишени заключается в нанесении порошка TeO_2 массой 200–300 мг в углубление на поверхности Pt-пластины, после чего полученную структуру помещают в печь, где происходит нагревание до температуры плавления 733°C . Расплавленный TeO_2 при охлаждении застывает на Pt-подложке, образуя стекловидный слой.

Охлаждение реализуется с помощью потока воды, направленного на тыльную часть мишени (Pt-подложка), и потока газа, чаще всего гелия, направленного на переднюю часть (слой TeO_2). Ввиду невысокой теплопроводности TeO_2 ($30 \text{ mW}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ [2]) процесс передачи тепла от вещества мишени к охлаждаемой подложке становится затрудненным, а переднее газовое охлаждение вносит небольшой вклад в теплоотвод. В связи с этим для повышения эффективности процесса формирования радиоизотопов необходимо реализовать более интенсивное охлаждение передней поверхности мишени, для чего в лаборатории радиоактивных веществ и технологий Томского политехнического университета было изготовлено и испытано устройство переднего охлаждения мишени на основе потока мелкодисперсной жидкости с использованием ультразвукового распыления. В ходе проведения экспериментов были исследованы различные режимы охлаждения мишени и их влияние на температуру мишени.

В связи с эмпирически доказанной эффективностью нового способа охлаждения существует необходимость оценки его эффективности путем определения коэффициента теплоотдачи охлаждаемой поверхности с учетом экспериментально определенных параметров температуры мишени.

Таблица 1. Изотопы иода и их применение

Изотоп	Тип распада	Период полураспада	Применение
^{120g}I	ЭЗ*: 100%	1.35 h	ОФЭКТ**
^{123}I	ЭЗ: 100%	13.2 h	ОФЭКТ
^{124}I	β^+ : 77.3%	4.2 days	ПЭТ*** + терапия
^{125}I	ЭЗ: 22.7%		
	ЭЗ: 100%	59.4 days	Брахитерапия

Примечание. * — электронный захват, ** — однофотонная эмиссионная компьютерная томография, *** — позитронная эмиссионная томография.

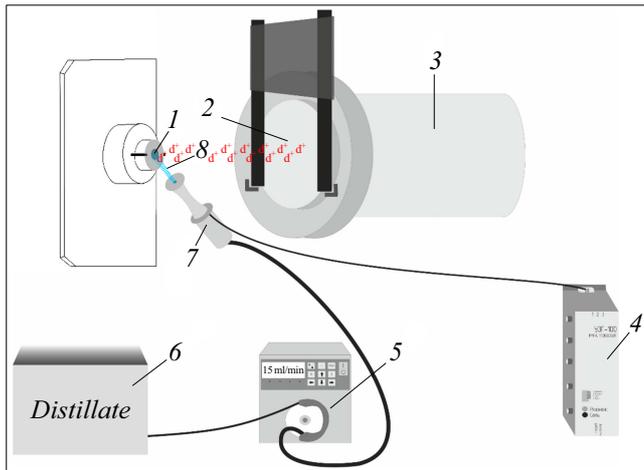


Рис. 1. Схема охлаждения мишени: 1 — охлаждаемая мишень, 2 — пучок заряженных частиц, 3 — канал циклотрона, 4 — ультразвуковой генератор, 5 — перистальтический насос, 6 — бак с дистиллированной водой, 7 — устройство распыления на основе УЗКС, 8 — факел распыления.

1. Описание способа охлаждения

Обычно для охлаждения передней стороны мишени при облучении в канале циклотрона используют охлаждение воздухом или гелием [3,4]. Это связано в первую очередь с малой активацией газа пучком и с низкими потерями энергии заряженных частиц при прохождении через газовый слой. При этом газовый теплоноситель имеет низкую теплопроводность, из-за чего даже при использовании высоких скоростей потока газа (~ 60 м/с) отведенная тепловая мощность находится на уровне 20–30 Вт.

Альтернативный способ охлаждения передней стороны мишени был разработан и опробован на циклотроне Р7М Томского политехнического университета [5]. Суть способа заключается в использовании в качестве хладагента мелкодисперсно распыленной воды. Для этого было разработано устройство охлаждения, включающее в себя ультразвуковую колебательную систему (УЗКС), перистальтический насос и резервуар с дистиллированной водой (рис. 1). УЗКС создает факел распыления, состоящий из водяных капель диаметром 80–100 мкм, направленный на переднюю (по отношению к пучку)

сторону облучаемой мишени. В качестве мишени использовался TeO_2 , наплавленный на Pt-подложку.

Основная идея разработанного способа заключается в том, что вода, попадая на разогретую поверхность мишени, частично испаряется и охлаждает мишень за счет энергии фазового перехода. В этой связи важно подобрать такой поток распыляемой воды, чтобы, с одной стороны, вода не испарялась полностью и поддерживала на поверхности мишени минимальную пленку жидкости, с другой, режим охлаждения не должен переходить в обычное конвективное омывание мишени водой. Данные режимы охлаждения зависят от температуры на поверхности мишени и могут регулироваться увеличением либо уменьшением производительности распыления с помощью системы обратной связи, планируемой к реализации в будущем.

2. Потери энергии и генерация тепла в мишени

Основным способом генерации тепла в мишени при прохождении заряженных частиц через вещество является процесс ионизационного торможения, который происходит при взаимодействии заряженной частицы с электронами атомных оболочек. В этом случае кинетическая энергия заряженной частицы тратится на возбуждение и ионизацию атомов среды, через которую она проходит. Потери энергии, связанные с ионизацией, играют главенствующую роль, поскольку сечение кулоновского взаимодействия с атомами превосходит сечение взаимодействия с ядрами [6].

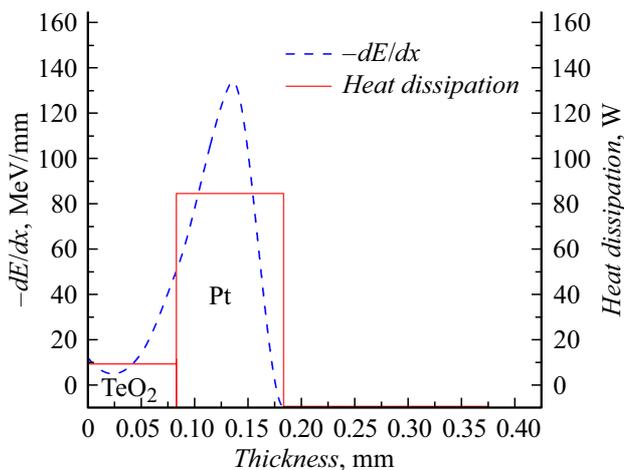
Для расчета потерь энергии в слоях TeO_2 и Pt использовалась программа SRIM [7]. Удельные ионизационные потери, а также зависимость пробега от энергии приведены в табл. 2.

Мишень облучалась пучком дейтронов с начальной энергией 13.6 MeV и током пучка 10 мкА. После прохождения поочередно Be–Al-фольги, отделяющей вакуум от атмосферы, слоя воздуха между фольгой и мишенью, а также слоя воды, энергия пучка снизилась до 11.3 MeV. С использованием данных из табл. 2 установлено, что мощность тепловыделения в слое TeO_2 равна 19 Вт, в слое Pt — 94 Вт (рис. 2).

Из рис. 2 видно, что пучок осаждает 19 Вт тепла в TeO_2 и затем теряет всю оставшуюся мощность в Pt.

Таблица 2. Удельные потери энергии и пробег высокоэнергетических дейтронов в $^{122}\text{TeO}_2$ и Pt

Энергия, MeV	$^{122}\text{TeO}_2$		Pt	
	$-dE/dx$, MeV/mm	Пробег, mm	$-dE/dx$, MeV/mm	Пробег, mm
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

**Рис. 2.** Изменение величины удельных потерь энергии и мощности тепловыделения по толщине двухслойной мишени (толщина TeO_2 — 0.083 mm, толщина Pt — 0.29 mm).

Так как охлаждение мишени реализовано только с передней стороны (со стороны пучка), 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 [5] на поверхности Pt ($129 \pm 0.51^\circ\text{C}$) является максимальной, что учтено в дальнейшем расчете эффективности теплоотдачи.

3. Геометрия и граничные условия

Моделирование проводилось с использованием модуля Heat Transfer in Solids and Fluids программного комплекса COMSOL Multiphysics [8]. Данный модуль позволяет моделировать процесс теплопереноса в твердых 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 TeO_2 (рис. 3). Свойства моделируемых материалов представлены в табл. 3. При создании геометрии мишени принималось, что слой TeO_2 распределен равномерно по тиглю Pt-подложки и его толщина одинакова по всей площади.

Для моделирования теплообмена в твердых телах используется уравнение теплопроводности, представляющее собой дифференциальную форму закона Фурье:

$$\rho C_p u \cdot \nabla T + \nabla q = Q, \quad (1)$$

где ρ — плотность твердого тела, $[\text{kg}/\text{m}^3]$; C_p — теплоемкость твердого тела при постоянном давлении; u — поле скоростей, $[\text{m}/\text{s}]$; Q — источник объемного тепловыделения, $[\text{W}/\text{m}^3]$; q — тепловой поток, $[\text{W}/\text{m}^2]$, который определяется исходя из уравнения Фурье:

$$q = -k \nabla T, \quad (2)$$

где k — теплопроводность материала, $[\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})]$; ∇T — градиент температуры, $[\text{K}/\text{m}]$.

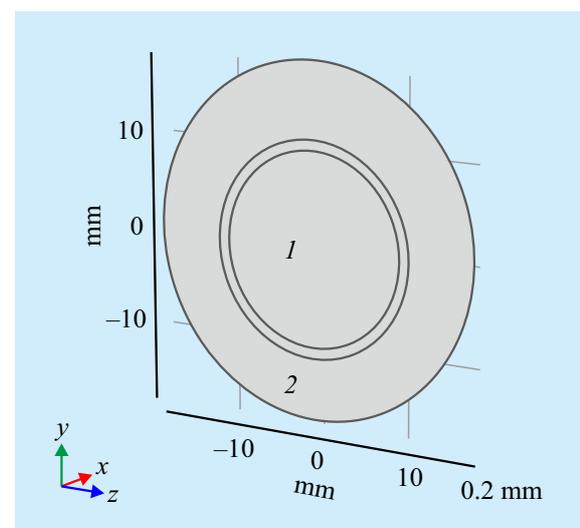
**Рис. 3.** Геометрия мишени из TeO_2 (1) на Pt-подложке (2). Размеры мишени: диаметр TeO_2 — 20 mm, толщина — 0.083 mm; диаметр Pt — 36 mm, толщина — 0.29 mm. Слой TeO_2 располагается в специальном тигле Pt-подложки с диаметром 22 mm.

Таблица 3. Основные свойства материалов TeO_2 [9] и Pt [10]

Слой	Плотность (ρ), $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	Теплопроводность (k), $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	Удельная теплоемкость (C_p), $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	Температура плавления (T_{melt}), $^{\circ}\text{C}$
TeO_2	5.67	3	398	733
Pt	21.47	71.7	132.6	1769

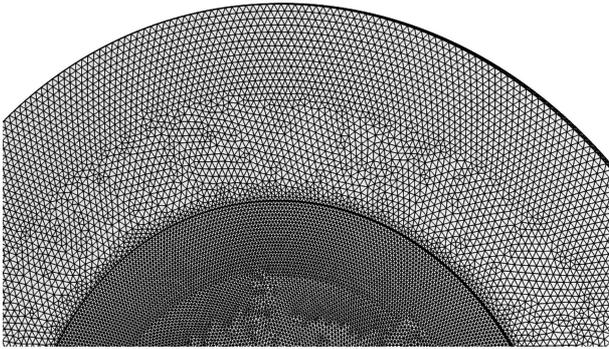


Рис. 4. Графическое представление исследуемого объекта вместе с расчетной сеткой, используемой для численного моделирования.

Так как моделирование проводится для стационарного случая, температурное поле считается установившимся и не зависящим от времени.

В связи с тем что пучок циклотрона имеет гауссово распределение плотности, объемное тепловыделение задавалось с помощью узла Deposited Beam Power и типом распределения плотности Top-hat. Исходя из динамики пучка циклотрона Р7М, радиус пучка R выбран равным 11 mm и размер переходной зоны сглаживания $\Delta R = 11$ mm, что соответствует идеальному скругленному профилю (разрывный цилиндрический пучок). Важно отметить, что мишень находится под углом 90° к пучку, ось x направлена перпендикулярно облучаемой поверхности мишени — по направлению движения пучка ионов.

Оценка интенсивности теплоотвода на охлаждаемой поверхности мишени определяется через коэффициент теплоотдачи из уравнения Ньютона–Рихмана:

$$q_0 = h\Delta T, \quad (3)$$

где q_0 — тепловой поток через границу теплообмена, $[\text{W}\cdot\text{m}^{-2}]$; h — коэффициент теплоотдачи, $[\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}]$; ΔT — разница между температурой горячей стенки и температурой хладагента.

Модель решалась со следующими граничными условиями:

- тепловыделение в слое TeO_2 : 19 W;
- тепловыделение в слое Pt: 94 W;
- коэффициент теплоотдачи на передней поверхности мишени: от 9000 до $10000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$;
- 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). Для исследования устойчивости производился расчет с постепенным увеличением количества узлов сетки, во всех случаях сходимость результатов решения достигала уровня 10^{-3} .

4. Результаты и обсуждение

Композиционно диоксид теллура является керамикой с плохой теплопроводностью ($3 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$), устойчивой к достаточно высоким тепловым нагрузкам без повреждения. Об этом говорит и сам способ приготовления мишени, состоящий в расплавлении порошка TeO_2 , расположенного в углублении Pt-подложки, и дальнейшем остывании с образованием стекловидного слоя. Равномерно нагреваемый или охлаждаемый диоксид теллура не разрушается и не трескается. Однако тепловое воздействие пучка заряженных частиц при облучении в циклотроне сильно отличается от нагрева в вакуумной печи и имеет следующие особенности.

1. Центр мишени всегда нагревается сильнее, чем периферия, так как плотность потока заряженных частиц в объеме пучка неравномерна и подчиняется гауссовому распределению.

2. Удельные потери энергии частиц при прохождении через вещество нелинейны — они увеличиваются по мере уменьшения энергии пучка, и слои мишени, расположенные в середине и ближе к подложке, нагреваются сильнее, чем поверхностные. Из этого следует, что чем толще слой оксида, тем больше градиент температуры в веществе. Данные особенности динамики тепловых потерь пучка вкуче с плохой теплопроводностью диоксида теллура приводят к образованию „горячих точек“ — мест локального перегрева вещества мишени, приводящих к ее разрушению.

Для определения интенсивности теплоотвода было рассчитано температурное поле при различных коэффициентах теплоотдачи на передней охлаждаемой стороне мишени (табл. 4). Из результатов видно, что значение температуры, наиболее близкое к эксперименту, рассчитывается при коэффициенте теплоотдачи, равном $9500 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ (131.39°C — расчетная и $129 \pm 0.51^{\circ}\text{C}$ — экспериментальная температуры).

Распределение температуры показано на рис. 5. Для коэффициента теплоотдачи $9500 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ максимальная температура приходится на неохлаждаемую Pt

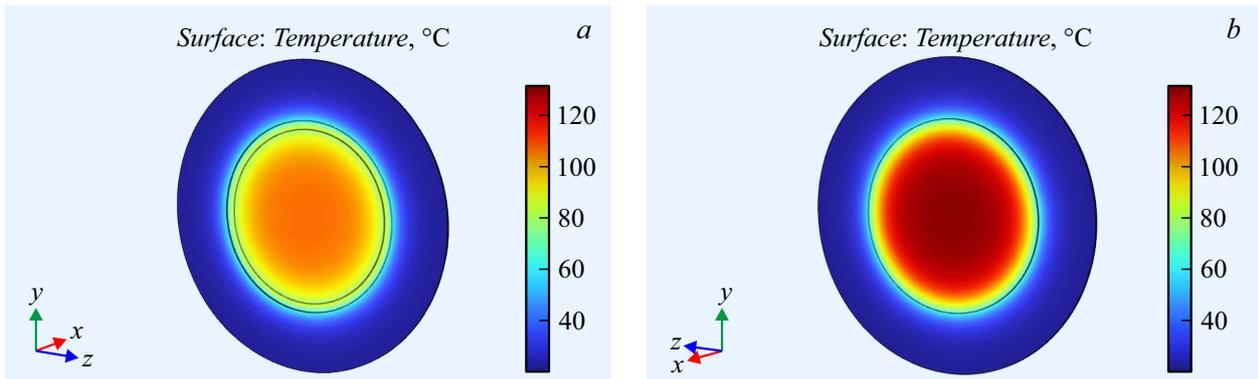


Рис. 5. Температурное поле мишени при интенсивности теплоотода $9500 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$; *a* — вид спереди, *b* — вид сзади. Максимальная температура наблюдается в Pt-подложке (*b*).

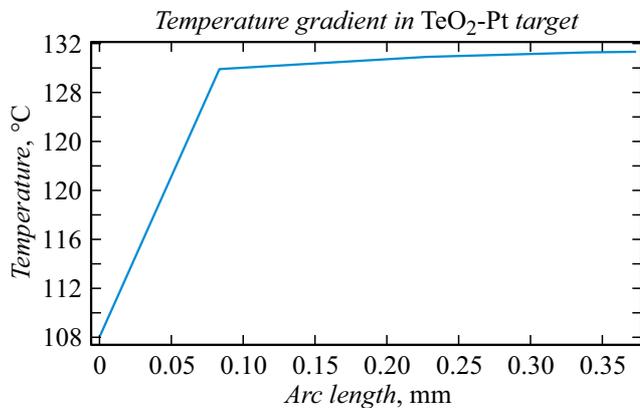


Рис. 6. Изменение температуры по глубине мишени для интенсивности теплоотода $9500 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$. Градиент температуры в TeO_2 (левая четверть рисунка $\text{Arc length} < 0.083 \text{ mm}$) гораздо больше, чем в Pt, что объясняется разницей в теплопроводности материалов (около 20 раз).

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

Коэффициент теплоотдачи, $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$	Температура Pt, $^{\circ}\text{C}$
9000	136.20
9500	131.39
10000	127.05

(131.4°C), в то время как слой TeO_2 имеет максимальную температуру 108°C . Сравнение расчетных значений с экспериментальными данными позволяет предположить, что интенсивность теплоотода на передней поверхности мишени с использованием мелкодисперсного распыления воды составляет $9000\text{--}10000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$. Это значение существенно превышает коэффициенты теплоотдачи, которые могут быть достигнуты с использованием системы мультиструйного газового

охлаждения ($200\text{--}300 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ при скорости газа $\sim 60 \text{ m/s}$ [11]).

Градиент температуры, представленный на рис. 6, показывает изменение температуры по толщине слоев TeO_2 и Pt. Из-за плохих теплопроводящих свойств температура более тонкого слоя TeO_2 изменяется сильнее, чем у более толстой Pt, что еще раз доказывает необходимость использования интенсивного переднего охлаждения двухслойной мишени.

В оригинальном эксперименте при облучении мишени током $10 \mu\text{A}$ установился тепловой баланс, в результате чего температура мишени была постоянной, однако после увеличения тока пучка до $15 \mu\text{A}$ температура мишени начала непрерывно увеличиваться и достигла значений свыше 200°C , что, в конечном итоге, привело к ее разрушению. Так как слой TeO_2 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 TeO_2 . 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 объему не представляется возможным. Также невозможно и предсказание такого перегрева средствами математического моделирования. Однако нами была оценена средняя температура слоя TeO_2 , при котором мишень остается целой. Исходя из результатов расчета, можно предположить, что температура $130\text{--}150^{\circ}\text{C}$ является максимальной, при которой не происходит разрушение мишени.

Заключение

С помощью программного пакета COMSOL Multiphysics проведено моделирование облучения мишени из $\text{TeO}_2\text{+Pt}$ пучком дейтронов с начальной

энергией 13.6 MeV и охлаждение передней поверхности мишени потоком мелкодисперсно распыленной воды с расходом 15 ml/min. По результатам моделирования установлено, что интенсивность теплоотвода на охлаждаемой поверхности указанным способом составляет $9000\text{--}10\,000\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$, при этом температура TeO_2 составляет 108°C . Результаты исследования будут использованы при оптимизации технологии наработки радиоиода на циклотроне.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках программы „Наука“ (Проект № FSWW-2023-0003).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *International Atomic Energy Agency. Technical reports series* № 432. (Vienna, 2004)
- [2] J.J. Comor, Z. Stevanovic, M. Rajcevic, D. Kosutic. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A*, **521** (1), 161 (2004). DOI: 10.1016/j.nima.2003.11.147
- [3] А.С. Семенов. Канд. дисс. (Томск, НИ ТПУ, 2022)
- [4] *Nirta Solid Compact Model TS06. Operating Manual. ELEX Commerce*. (Belgrade, Serbia, 2010)
- [5] С.С. Салодкин, В.В. Сохорева. Приборы и техника эксперимента, 2024 (в печати).
- [6] А.П. Черняев. *Ионизирующие излучения* (ИД КДУ, М., 2014), 3 изд., испр. и доп.
- [7] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B*, **268** (11–12), 1818 (2010). DOI: 10.1016/J.NIMB.2010.02.091
- [8] *Введение в COMSOL Multiphysics. Документация* (COMSOL, 1998–2018)
- [9] Г.В. Самсонов. *Физико-химические свойства окислов: справочник* (Металлургия, М., 1978)
- [10] В.Е. Зиновьев. *Теплофизические свойства металлов при высоких температурах* (Металлургия, М., 1989)
- [11] А.П. Баскаков, Б.В. Берг, О.К. Витт. *Теплотехника: учебное пособие для вузов* (Энергоатомиздат, М., 1991)