

УДК 539.17

О НАРАБОТКЕ ^{60}Co НА НЕЙТРОННОМ ГЕНЕРАТОРЕ

А.Н. Довбня^{*)}, Э.Л. Купленников^{*)}, В.А. Цымбал^{*)},
В.В. Красильников^{**)}

^{*)}Национальный научный центр ХФТИ

ул.Академическая, 1, г.Харьков, 61108, Украина, e-mail: kupl@kipt.kharkov.ua

^{**)}Белгородский государственный университет

ул.Победы, 85, г.Белгород, 308015, Россия

Проведены детальные оценки возможности применения нейтронного генератора с интенсивностью потока тепловых нейтронов $10^{12} \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ для получения изотопа ^{60}Co на основе ядерной реакции $^{60}\text{Co}(n\gamma)^{60m,g}\text{Co}$.

Ключевые слова: генератор нейтронов, тепловые нейтроны, радиоизотопы кобальта, ядерная медицина.

1. Введение

При получении радиоактивных изотопов (РИ) с помощью нейтронных реакций не всегда прибегают к отделению радиоактивного вещества. Так например, γ -источники ^{60}Co изготавливаются путем облучения в реакторах стержней или дисков из металлического кобальта. В результате реакции $^{59}\text{Co}(n\gamma)^{60}\text{Co}$ могут быть получены γ -источники с интенсивностью до 3000-5000 Ки. Практически достижимая скорость образования ^{60}Co в реакторе с плотностью потока нейтронов $3\cdot 10^{13} \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ составляет примерно 5 Ки ^{60}Co на 1 грамм металла в месяц [1].

Кобальт – стабильный, одноизотопный элемент с атомным номером 27, массовым числом 59 и атомным весом 58.9332. Плотность кобальта естественного изотопного состава (^{Nat}Co) 8.9 г/см³. Из десяти известных радиоактивных изотопов (РИ) кобальта и нескольких изомеров наиболее важным является ^{60}Co . Он может находиться в двух состояниях – метастабильном (m) и основном (g). Эти состояния образуются в результате реакции $^{60}\text{Co}(n\gamma)^{60m,g}\text{Co}$, причем оба состояния образуются одновременно. Испускаемое ^{60}Co γ -излучение обладает достаточно мощной проникающей способностью, что позволяет широко использовать данный РИ в различных сферах деятельности человека, в том числе и медицине для лечения онкологических заболеваний и в других целях.

Одним из примеров классического терапевтического использования ^{60}Co является применение специальных конструкций – так называемых "гамма-скальпелей". Они содержат около двухсот крошечных источников ^{60}Co с высокой удельной активностью, которые фокусируются извне с помощью соответствующих коллиматоров на опухоль (преимущественно головного мозга) и действуют, как скальпель. При другом терапевтическом подходе изотопы вкладываются в соответствующие микрокапсулы и внедряются в опухолевые ткани [2].

О важности производства ^{60}Co говорит хотя бы тот факт, что в настоящее время он наряду с некоторыми другими РИ отнесен к приоритетным видам нуклидной продукции медицинского назначения, призванной обеспечить реализацию проблемы развития ядерной медицины в России. И это при условии, что страна, не считая производств по выпуску

изотопов урана и плутония, имеет 17 крупных производителей стабильных и радиоактивных изотопов, и что только каналные реакторы РБМК-1000 Ленинградской АЭС позволяют накапливать ^{60}Co с удельной активностью 50-80 Ки/г в объемах до 6-8 млн. Ки в год как в виде сырья, так и в виде источников.

В настоящей работе проведены детальные оценки возможности использования нейтронного генератора (НГ) с интенсивностью потока тепловых нейтронов (ТН) 10^{12} н·см $^{-2}$ ·с $^{-1}$ для получения изотопов $^{60m,g}\text{Co}$ на основе ядерной реакции $^{60}\text{Co}(n\gamma)^{60m,g}\text{Co}$.

2. Оптимальные параметры образца

В качестве мишени для получения $^{60m,g}\text{Co}$ рассматривался диск из металлического ^{59}Ni диаметром 1.128 см ($S = 1\text{см}^2$). Оптимальная толщина образца выбрана равной средней длине свободного пробега нейтрона в кобальте. Она вычислялась с использованием полного макроскопического сечения Σ_t , которое характеризует всю совокупность процессов взаимодействия нейтронов с веществом. Здесь $\Sigma_t = \rho^* \sigma_t$, где ρ^* – число элементарных мишеней в единице объема, σ_t – полное сечение взаимодействия тепловых нейтронов. Подставляя соответствующие величины $\rho^* = 9.1 \cdot 10^{22}$ см $^{-3}$, $\sigma_t = 46$ барн, получаем $\Sigma_t = 4.186$ см $^{-1}$. Таким образом, оптимальная толщина мишени, равная средней длине свободного пробега [3], $\Lambda_t = 1/\Sigma_t = 0.239$ см. Это означает, что плотность потока ТН в ^{59}Ni на расстоянии 0.239 см от поверхности диска падает в $\epsilon = 2.7183$ раз. Полученные величины позволяют оценить средний поток нейтронов, проходящий через мишень. При начальной величине потока $\sim 10^{12}$ н·см $^{-2}$ ·с $^{-1}$ его среднее значение $\sim 0.684 \cdot 10^{12}$ н·см $^{-2}$ ·с $^{-1}$. Для вышеприведенных параметров масса диска $m = 2.127$ г, а число ядер в образце равно $2.17 \cdot 10^{22}$.

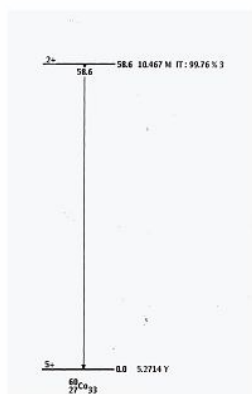


Рис. 1. Схема γ -распада изотопа ^{60m}Co .

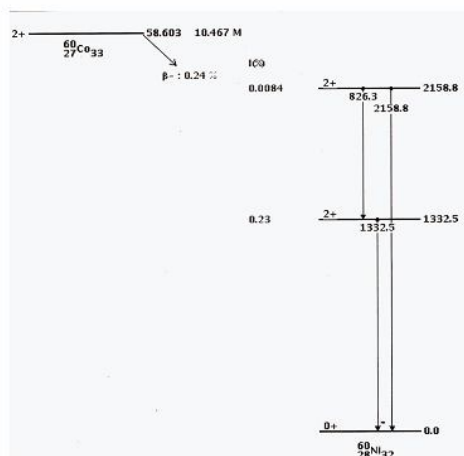


Рис. 2. Схема β^- -распада изотопа ^{60m}Co .

3. Нарботка ^{60m}Co

Метастабильное состояние ^{60m}Co , спин-чётность которого 2^+ , излучает γ -кванты (изомерный переход (ИП)) с энергией 58.60 кэВ (мода распада 99.76%), и переходит в основное состояние ^{60}Co (рис. 1). Одновременно за счет β^- -распада (0.24%) ^{60m}Co переходит на 2^+ уровни ^{60}Ni с энергией 2158.8 (I = 0.0084%) и 1332.5 кэВ (I = 0.23%). В конечном итоге, практически каждый акт излучения β^- -частицы сопровождается вылетом γ -кванта с = 1332.5 кэВ. Схема β^- -распада ^{60m}Co приведена на рис. 2.

Выражение для вычисления активности радионуклида изотопа А (Бк), накопившейся в образце за время облучения t_i (с) тепловыми нейтронами с плотностью потока Φ ($\text{n}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$), можно представить в стандартном виде [4]:

$$A = \lambda N = \Phi N_x \sigma (1 - \exp(-\lambda t_i)) \exp(-\lambda t_c) (1 - \exp(-\lambda t_m)), \quad (1)$$

где $\lambda = 0.693/T_{1/2}$ – константа распада РИ (с^{-1}); $T_{1/2}$ – период полураспада РИ (с); N – количество накопившихся радиоактивных ядер; N_x – число ядер стабильного изотопа анализируемого элемента в облучаемой пробе; σ – сечение реакции (см^2); t_c – время, затраченное на транспортировку пробы к месту детектирования или специальной выдержки для распада мешающих анализу более короткоживущих продуктов ядерной реакции; t_m – продолжительность измерения активности.

В связи с тем, что период полураспада ($T_{1/2} = 10.467$ мин) ^{60m}Co существенно меньше ($T_{1/2} = 1925.28$ дня) для ^{60}Co , а сечения образования РИ отличаются незначительно, наработка ^{60m}Co , а соответственно и его активность со временем t_i , нарастает значительно быстрее.

Как правило, исследуемые мишени облучают в течение времени ($T_{1/2} - 3T_{1/2}$), т.к. при $t_i > 3T_{1/2}$ активность стремится к "насыщенной активности", т.е. когда число образующихся в единицу времени радиоактивных ядер равно числу распавшихся. Практически это означает, что в (1) величина

$$(1 - \exp(-\lambda t_i)) \rightarrow 1,$$

т.е. активность принимает максимально возможное значение. В данном случае "насыщенная активность", т.е.

$$(1 - \exp(-\lambda t_i)) = 0.99 \sim 1$$

имеет место при минимальном времени облучения $t_i = 1.16$ часа.

Подставляя в (1) время облучения 1.16 часа, константу распада $^m\lambda = 1.10 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$, сечение $^m\sigma = 20.4$ барн [5] (без учета времени t_c и t_m), получаем число активированных ядер $^{60m}\text{Co} \sim 2.725 \cdot 10^{14}$, а их активность $\sim 29.98 \cdot 10^{10}$ Бк ~ 8.10 Ки. Поскольку ИП наблюдается у 99.76% ядер, то на момент отключения НГ активность излучения γ -квантов с энергией $E_\gamma = 58.60$ кэВ будет несколько меньше $29.91 \cdot 10^{10}$ Бк ~ 8.08 Ки.

Как было сказано ранее, при радиационном захвате нейтрона ^{59}Co одновременно образуются как ^{60m}Co , так и ^{60}Co . Последний излучает основные γ -кванты совершенно другого диапазона энергий $E_\gamma = 1173.2$ и 1332.5 кэВ. Поэтому определенный интерес представляет величина вклада ^{60}Co относительно ^{60m}Co . Проведенный анализ показал, что за время облучения $t_i = 1.162$ часа (ввиду огромной разницы в периодах полураспада) ядра ^{60}Co в образце практически не нарабатываются.

Следует также иметь в виду, что ^{60m}Co в течение всего времени активации интенсивно поглощает ТН. Сечение этого процесса 58 барн. Поэтому часть ядер ^{60m}Co в принципе должно перейти в $7/2^-$ состояние ^{61}Co . Этот РИ излучает β^- -частицы (100%) с периодом полураспада 1.65 часа и переходит на возбужденный $5/2^-$ уровень с энергией 909.2 кэВ (4.4%) и $5/2^-$ уровень с энергией 67.4 кэВ (95.6%) ^{61}Ni . При переходе с уровня $5/2^-$ в стабильное $3/2^-$ состояние ^{61}Ni излучается γ -квант $E_\gamma = 67.4$ кэВ. Количественные оценки данного процесса показали, что при $t_i = 1.162$ часа примерно $3.6 \cdot 10^7$ ядер ^{60m}Co превращаются в ^{61}Co , активность которого пренебрежимо мала $\sim 4.2 \cdot 10^3$ Бк.

Таким образом, можно считать, что облученный образец первоначально содержит в основном ядра ^{60m}Co и является практически моноэнергетическим γ -излучателем $E_\gamma = 58.60$ кэВ.

4. Нароботка ^{60}Co

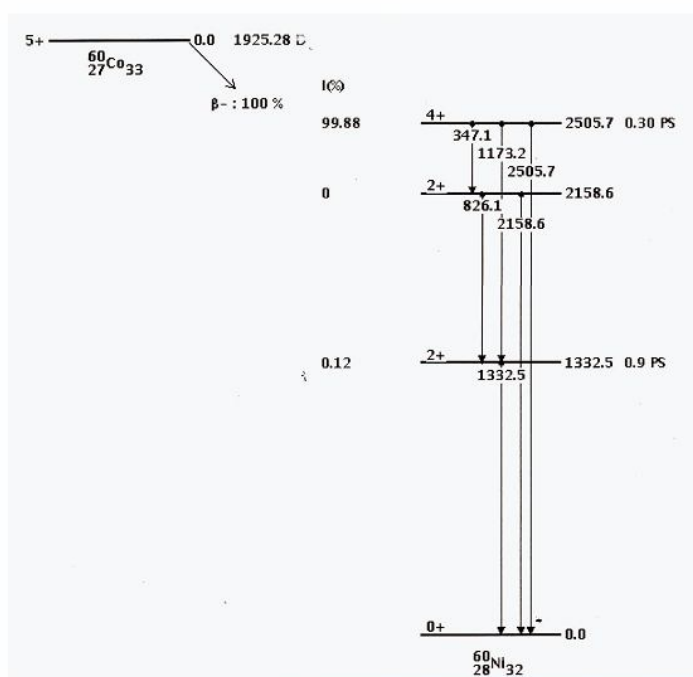
С течением времени все большее количество короткоживущих ядер ^{60m}Co переходит на уровень с энергией 0.0 МэВ, спином и четностью 5^+ долгоживущего ^{60}Co (мода распада (100%)). Схему распада ^{60}Co можно видеть на рис. 3. Видно, что 5^+ состояние ^{60}Co в результате испускания β^- -частицы с вероятностью 99.88% переходит в возбужденное 4^+ состояние с энергией 2505.7 кэВ и с интенсивностью 0.12% – в 2^+ состояние с энергией 1332.5 кэВ ^{60}Ni . Распад РИ сопровождается несколькими слабыми γ -линиями с интенсивностью $\sim (2 \cdot 10^{-6} - 0.0076)\%$, а также двумя сильными γ -линиями 1173.2 кэВ ($I_\gamma = 99.85\%$) и 1332.5 кэВ ($I_\gamma = 99.98\%$).

Как было сказано ранее, следуя закону радиоактивного распада, через несколько часов выдержки для распада образовавшегося ^{60m}Co в образце останутся практически только ядра ^{60}Co . Их количество составит примерно $2.718 \cdot 10^{14}$ ядер, что соответствует γ -активности $\sim 1.14 \cdot 10^6$ Бк ~ 30.7 мКи. Полученная в результате вышеописанного процесса $^{60m}\text{Co} \xrightarrow{\text{ИП}} ^{60}\text{Co}$ γ -активность ^{60}Co достаточно мала, однако, она заметно больше предельных доз, допускаемых в медицинских процедурах. Эти дозы, применяемые при исследовании систем жизнедеятельности человека, следующие (см. [6]): внутривенное введение – 3 мКи, введение внутрь через полость рта – 0.33 - 0.60 мКи, в воде $2 \cdot 10^{-2}$ мКи/мл и в воздухе 10^{-6} мКи/см³.

Большой период полураспада ^{60}Co указывает на то, что множитель $(1 - \exp(-\lambda t_i))$ в (1) при $t_i \ll 3T_{1/2}$ быстро убывает. Поэтому время облучения для получения ^{60}Co непосредственно в реакции $^{59}\text{Co}(n\gamma)^{60}\text{Co}$ следует выбирать как можно больше (в пределах разумного). В данном случае выбрано время $t_i = 66$ часов, что обусловлено возможностью (в будущем) облучать одновременно в разных технологических каналах изотоп ^{98}Mo для получения ^{99m}Tc и ^{59}Co для наработки ^{60}Co . Сечение данной реакции на тепловых нейтронах [5, 7]:

$$^g\sigma + ^m\sigma = (37.18 \pm 6)\text{барн},$$

сечение $^m\sigma = (20.4 \pm 8)$ барн, т.е. $^g\sigma = 16.78$ барн. Численные оценки наработки ^{60}Co в реакции $^{59}\text{Co}(n\gamma)^{60}\text{Co}$ с учетом того, что только 99.76% образовавшегося ^{60m}Co с течением времени превращается в ^{60}Co , дают полное число образовавшихся ядер $^{60}\text{Co} \sim 6.0 \cdot 10^{16}$, а активность ~ 6.8 мКи. Учитывая, однако, что каждые 1.162 часа в образце за счет процесса $^{60m}\text{Co} \xrightarrow{\text{ИП}} ^{60}\text{Co}$ также образуется максимальное (равновесное) количество ядер ^{60}Co , суммарная активность наработанного в образце ^{60}Co за время $t_i = 66$ часов окажется равной 8.54 мКи. Полученная величина активности в одном образце существенно

Рис. 3. Схема распада ^{60}Co .

больше предельных доз, допускаемых в медицине (см. текст выше). Если же учесть возможность активации в НГ не одной мишени, а целой гирлянды, состоящей из большого числа образцов, то это, по-видимому, даст возможность создать гамма-скальпель.

Следует отметить, что ^{60}Co также интенсивно поглощают ТН. Сечение этого процесса 2 барна. Поэтому часть образовавшихся ядер кобальта, в принципе, могут перейти в ^{61}Co . Количественные оценки данного процесса показали, что его влияние на конечную активность ^{60}Co мало.

5. Эффект самопоглощения в образце

В случае применения $^{60m,g}\text{Co}$ на практике необходимо вводить поправку на эффект самопоглощения γ -квантов в материале образца [8]. Этот эффект проявляется как результат того, что источники, которые исследуются в реальных экспериментах, не являются точечными, а имеют конечные размеры. В результате γ -кванты взаимодействуют со средой мишени посредством трех основных эффектов: фотоэффект, Комптон-эффект и рождение электрон-позитронных пар. Эти взаимодействия приводят к поглощению γ -квантов в среде до того, как они вылетят из образца. Самопоглощение считается отсутствующим, если толщина образца $< 100 \text{ мг/см}^2$. Это справедливо практически для всего энергетического диапазона, начиная с 50 кэВ.

Оценки самопоглощения для ^{60m}Co , проведенные в приближении когда γ -кванты излучаются параллельно друг относительно друга перпендикулярно крышке γ -спектрометра, показали, что для толщины образца 0.239 см поправка на самопоглощение ~ 0.32 . Для

уменьшения влияния данного эффекта облучаемый диск должен состоять из набора тонких фольг ^{Nat}Co . Например, поправка для слоя ^{Nat}Co 0.02 см почти втрое больше ~ 0.89 . Ясно, что активность каждой фольги будет заметно меньше относительно целого образца толщиной 0.239 см и будет дополнительно падать от фольги к фольге вследствие поглощения нейтронов в веществе предыдущих слоев.

Поправки на эффект самопоглощения для диска из металлического кобальта естественного изотопного состава толщиной 0.239 см с примесью ядер ^{60}Co , которые излучают γ -кванты с энергией 1173.2 (1332.5) кэВ, составляют 0.94 (0.95) соответственно.

6. Заключение

При облучении диска из ^{Nat}Co площадью 1 см² и толщиной 0.239 см тепловыми нейтронами в течение $t_i = 1.16$ часа (условие радиоактивного равновесия) с учетом того, что изомерный переход наблюдается у 99.76% ядер, активность ядер $^m\text{Co} \sim 8.08$ Ки. Данный образец в первоначальный момент является практически моноэнергетическим γ -излучателем $E_\gamma = 58.60$ кэВ. Поправка на самопоглощение в исследуемом образце ~ 0.32 .

Вследствие процесса $^{60m}\text{Co} \xrightarrow{ИП} ^{60}\text{Co}$ через несколько часов после окончания активации в мишени останутся только ядра ^{60}Co в количестве $\sim 2.718 \cdot 10^{14}$, что соответствует активности $\sim 1.136 \cdot 10^6$ Бк ~ 30.7 мКи.

Активность ^{60}Co , наработанная в реакции $^{59}\text{Co}(n\gamma)^{60}\text{Co}$, при облучении тепловыми нейтронами в течение $t_i = 66$ часов, составляет ~ 6.8 мКи. Суммарная активность за счет обоих процессов ~ 8.54 мКи. Поправки на эффект самопоглощения для энергии 1173.2 (1332.5) составляют 0.94 (0.95) соответственно.

Полученная величина активности в одном образце больше предельных доз, допускаемых для ряда диагностических и терапевтических процедур. Если же учесть возможность активации в ИГ не одной мишени, а целой гирлянды, состоящей из большого числа тонких образцов, то это, по-видимому, даст возможность создать гамма-скальпель для терапии различных опухолей.

Работа поддержана грантом УНТЦ № Р333.

Литература

1. Бреслер С.Е. Радиоактивные элементы / С.Е. Бреслер. – М.: Изд. технико-теорет. лит., 1957. – 552 с.
2. Баранов В.Ю. Изотопы II / В.Ю. Баранов. – М.: Физматлит, 2005. – 728 с.
3. Блан Д. Ядра, частицы, ядерные реакторы / Д.Блан. – М.: Мир, 1989. – 336 с.
4. Немец О.Ф. Справочник по ядерной физике / О.Ф. Немец, Ю.В. Гофман. – Киев: Наукова Думка, 1975. – 416 с.
5. Радиационный захват нейтронов (Справочник)/– М.: Энергоатомиздат, 1986. – 248с.
6. Гайсинский М. Радиохимический словарь элементов / М. Гайсинский, Ж. Адлов. – М.: Атомиздат, 1968. – 256с.

7. N. Moss, L. Yaffe. Determination of the neutron capture cross section for the $^{59}\text{Co}(n\gamma)^{60m}\text{Co}$ reaction // Canadian Journal of Chemistry. – 1953. – 31. – P.391-395.
8. Cutshall N.H., Larsen I.L., Olsen C.R Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: self-absorption corrections // Nucl. Inst. and Meth. – 1983. – 206. – P.309-312.

ON ^{60}Co PRODUCTION AT NEUTRON GENERATOR

A.N. Dovbnya¹⁾, E.L. Kuplennikov¹⁾, V.A. Tsymbal¹⁾,
V.V. Krasil'nikov²⁾

¹⁾National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"
Akademicheskaya St., Kharkov, 61108, Ukraine, e-mail: kupl@kipt.kharkov.ua

²⁾Belgorod State University
Pobedy St., 85, Belgorod, 308015, Russia, e-mail: kras@bsu.edu.ru

It is fulfilled detailed estimates of possibility of the neutron generator with intensity flow of thermal neutrons $10^{12}\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ for the application of ^{60}Co production on the base of the $^{59}\text{Co}(n\gamma)^{60m,g}\text{Co}$ nuclear reaction.

Key words: neutron generator, thermal neutrons, cobalt radioisotopes, nuclear medicine.