

УДК 621.039.5

URL: <http://ptsj.ru/catalog/iemim/sta/988.html>

АНАЛИЗ НАКОПЛЕНИЯ МЕДИЦИНСКИХ ИЗОТОПОВ В АКТИВНОЙ ЗОНЕ КАНАЛЬНОГО РЕАКТОРА НА ПРИМЕРЕ САМАРИЯ-153

А.С. Ильин
С.А. Рябинин
В.В. Семишин

artemilin01@mail.ru
ryabinin18022000@mail.ru
semishin@bmstu.ru
SPIN-код: 8913-1645

МГТУ им. Н.Э. Баумана, Москва, Россия

Исследована динамика накопления изотопа самария-153 (Sm^{153}) в активной зоне канального ядерного реактора с графитовым замедлителем. Расчет проведен в два этапа. На первом этапе определен нуклидный состав топлива, выгоревшего до 15 МВт · сут/кг. Это необходимо для учета того, что канал с облучательным устройством окружен несвежим топливом. На втором этапе найдена активность Sm^{153} при варьировании параметров, а также определена скорость его накопления. Результаты расчетного моделирования показали, что на активность и скорость накопления влияют такие факторы, как обогащение топлива, содержание в нем выгорающего поглотителя (в данном случае эрбия) и шаг решетки. На основе полученных результатов предложены значения варьируемых параметров, которые позволяют более интенсивно нарабатывать изотопы медицинского назначения.

Ключевые слова: радиоизотопы, канальный реактор, ядерная медицина, изотопы медицинского назначения, радиофармпрепараты, самарий-153

Введение. Начиная с 2000-х годов во всем мире растет интерес к использованию радиоизотопов в науке и производстве. Одно из перспективных и быстро развивающихся направлений изотопного бизнеса — медицинские изотопы и радиофармпрепараты (РФП) на их основе, наработку которых можно осуществлять как на быстрых или канальных реакторах, так и на циклотронах [1–4].

На энергоблоках Ленинградской АЭС начиная с 1991 г. нарабатываются радиоизотопы медицинского назначения — углерод-14 (C^{14}), йод-125 (I^{125}), йод-131 (I^{131}), молибден (Mo^{99}) и промышленного — кобальт-60 (Co^{60}), ядерно-легированный кремний (Si^{30}) [5]. Также стоит отметить, что I^{125} и C^{14} могут применяться и как изотопы промышленного назначения — для создания образцовых растворов и эталонных источников бета-излучения.

В связи с увеличением спроса на РФП в данной работе предложено провести анализ накопления изотопов медицинского назначения (ИМН) в активной зоне. Рассмотрен канальный уран-графитовый реактор, поскольку

именно в реакторах такого типа есть возможность загружать и выгружать из зоны облучательные устройства (ОУ) при работе реактора на энергетических уровнях мощности. Это позволяет производить радионуклиды без снижения производства электричества.

Самарий-153 (Sm^{153}) применяется при терапии в онкологической практике с целью стойкого снижения болевого синдрома при множественном метастатическом поражении скелета. Накапливается в костных метастазах (в костной ткани, контактирующей с опухолевыми клетками). Применяется при раке молочной, предстательной, щитовидной желез, а также при раке легких, почек и др. [6].

В качестве референтного объекта в данной работе рассмотрен реактор РБМК-1000, поскольку он является канальным и имеется реальный опыт наработки ИМН на данном реакторе [2].

Цель данной работы — варьирование параметров для наработки изотопной продукции в уран-графитовом реакторе, анализ полученных результатов, а также выбор наиболее предпочтительного варианта. К варьируемым параметрам относятся: шаг расположения каналов в активной зоне, обогащение топлива, содержания эрбия в топливе.

Исходными данными для расчета являются:

1) геометрия тепловыделяющей сборки (ТВС) и технологического канала (ТК) реактора (за основу конструкции ТВС и ТК приняты решения, используемые для отечественных канальных реакторов [2, 3]);

2) ширина графитового блока квадратного поперечного сечения от 240 до 250 мм;

3) глубина выгорания 15 МВт · сут/кг [3];

4) обогащение топлива 2,6...3,6 % [7];

5) содержание эрбия в топливе 0,2...0,8 % [7];

6) мощность канала, равная 1,6 МВт (ТК средней мощности).

Постановка задачи. Нейтронно-физический расчет проводят в программном комплексе (ПК) MCU-FREE. Программное средство MCU-FREE предназначено для решения аналоговыми и неаналоговыми методами Монте-Карло неоднородных уравнений переноса нейтронов, фотонов, электронов и позитронов. Для нейтронов программа позволяет решать и однородное уравнение (задачи о критичности систем, размножающих нейтроны). Математически это означает, что для рассматриваемой системы решается кинетическое уравнение с заданными граничными условиями, описывающее распределение в ней потока частиц. Также в программе обеспечена возможность расчетного предсказания изотопного состава материалов реактора и его размножающих свойств в зависимости от длительности кампании [8].

На первом этапе осуществляется разработка расчетной модели для определения нуклидного состава топлива со средней глубиной выгорания, принятой равной 15 МВт · сут/кг. Данная модель расчетной ячейки универсальна, поскольку она будет использована для определения нуклидного состава топлива, выгоревшего до 15 МВт · сут/кг, с целью дальнейшего проведения поисковых расчетов. Данная модель позволит определить нуклидный состав выгоревшего топлива в зависимости от его начального обогащения, содержания в нем эрбия и шага решетки активной зоны.

Для разработки модели сначала необходимо задаться геометрией ячейки, а затем рассчитать ядерные концентрации каждого входящего в ячейку материала. Для определения нуклидного состава всех материалов в ПК Mathcad рассчитывают ядерные концентрации каждого материала, чтобы задать их как исходные данные расчета (при этом топливный состав задавался как для свежего топлива). Расчет выполняют по формуле

$$N = \frac{N_A \rho_{\text{в-ва}}}{A},$$

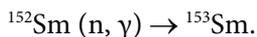
где N_A — число Авогадро; $\rho_{\text{в-ва}}$ — плотность вещества; A — молярная масса элемента; N — искомая ядерная концентрация.

После определения ядерных концентраций материалов задают граничные условия для расчетной ячейки. В качестве граничных условий по торцам и боковым граням приняты условия «трансляционной симметрии», т. е. имитация бесконечной активной зоны. Далее в топливе необходимо смоделировать источник нейтронов, а также задать другие расчетные параметры в соответствии с методикой расчетов в ПК MSU.

На втором этапе разрабатывают модель поля ячейки, выбранной по результатам предварительного анализа возможной структуры картограммы активной зоны. С использованием данной модели при варьировании вышеупомянутых параметров будет определяться реактивность рассматриваемой поля ячейки, а также активность нарабатываемого изотопа Sm^{153} при облучении блок-контейнеров (БК), содержащих оксид самария (стартовый материал для наработки Sm^{153}).

В канальных реакторах блок-контейнеры со стартовым веществом выдерживают в активной зоне в течение 5 суток. За это время происходит наработка изотопа Sm^{153} активностью 344 Ки/г.

Реакция получения изотопа Sm^{153} имеет следующий вид:



В поляйчке задают все необходимые для проведения расчета исходные параметры. Значения определяемых параметров активной зоны в ходе выполнения серии расчетов изменяют. Основным результатом проводимых расчетов является определение коэффициента размножения в бесконечной среде K_{∞} и динамики накопления изотопа Sm^{153} .

Расчетная модель. В ПК MCU-FREE разработана расчетная модель топливной ячейки, с помощью которой определяют нуклидный состав [8]. В состав модели топливной ячейки входят:

- графитовый блок;
- гелиевый зазор;
- труба ТК;
- теплоноситель;
- оболочки твэлов;
- топливные таблетки;
- центральный несущий стержень.

Геометрия расчетной ячейки представлена на рис. 1, а, б.

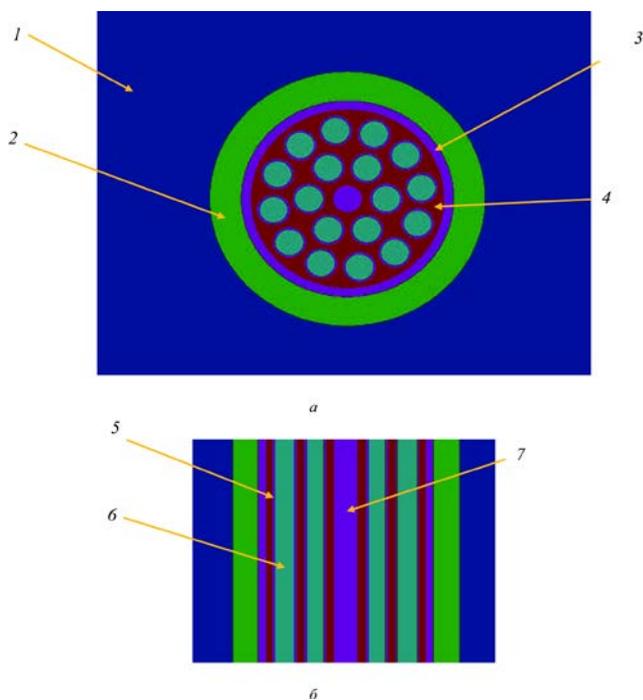


Рис. 1. Схема расчетной ячейки:

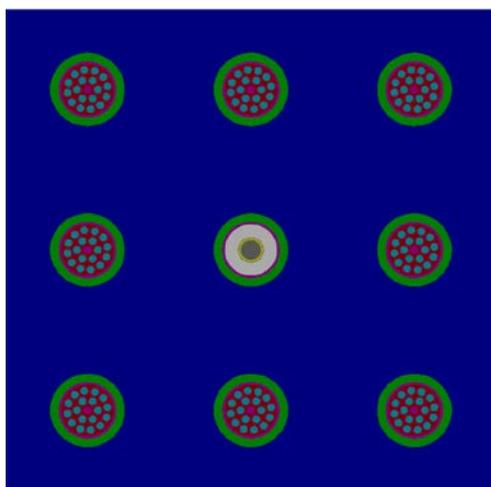
а — вид сверху; *б* — поперечное сечение; 1 — графитовый блок; 2 — гелиевый зазор; 3 — труба ТК;
4 — теплоноситель; 5 — оболочка твэла; 6 — топливо; 7 — центральный стержень

Для расчета приняты следующие исходные данные:

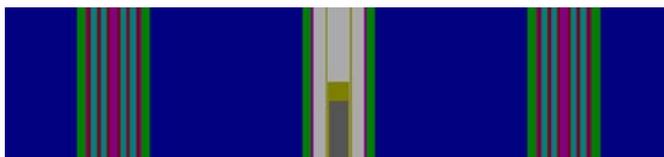
- обогащение топлива — 2,6 %;
- содержание эрбия — 0,6 %;
- графитовый блок имеет вид куба с гранями по 250 мм;
- высота ячейки — 250 мм;
- время облучения свежей ТВС до заданного выгорания — 834 сут;
- мощность одного канала — 1,6 МВт.

По результатам серии расчетов были получены наборы нуклидных составов выгоревшего до глубины 15 МВт · сут/кг топлива в зависимости от исходных значений варьируемых параметров (обогащение топлива, содержание в нем эрбия и шаг решетки активной зоны) [2, 3].

Далее была разработана полячейка размером 3×3, содержащая восемь топливных каналов и один канал с облучательным устройством. Геометрия полячейки представлена на рис. 2.



a



б

Рис. 2. Геометрия полячейки:

a — поперечный разрез; *б* — продольный разрез

Облучательные устройства располагаются в трех каналах системы управления и защиты (СУЗ) и состоят из фланца и гирлянды титановых блок-контейнеров, соединенных с фланцем и между собой титановой проволокой. Для накопления изотопов Sm^{153} в качестве стартового вещества используют оксида самария Sm_2O_3 с обогащением 90 % по Sm^{152} . Внутри каждого БК размещают 9 г стартового вещества. После выдержки в активной зоне ОУ извлекают с наработанным изотопом Sm^{153} внутри контейнера.

В качестве результатов расчетов ПК MSU выдает, в том числе, ядерные концентрации изотопа самария, которые затем необходимо пересчитать в активность в ПК Mathcad.

Удельную объемную активность Sm^{153} в БК рассчитывали по следующей формуле:

$$a_{Vi} = N_i \lambda_i,$$

где a_{Vi} — удельная объемная активность, Бк/см³; i — конкретный день расчета; N_i — концентрация радионуклида в конце одного полного конкретного дня в БК; λ_{Sm} — постоянная распада самария, с⁻¹.

$$\lambda_{\text{Sm}} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}},$$

где $T_{1/2}$ — период полураспада Sm^{153} , с.

$$\lambda_{\text{Sm}} = \frac{\ln 2}{46,2 \cdot 3600 \text{ с}} = 4,168 \cdot 10^{-6} \text{ с}^{-1}.$$

Абсолютную активность радионуклида в БК, Бк, вычисляли по формуле

$$A_i = a_{Vi} V.$$

Здесь V — объем стартового вещества в одном БК, см³,

$$V = \frac{9 \text{ г}}{\rho_{\text{Sm}_2\text{O}_3}} = \frac{9 \text{ г}}{7,52 \text{ г/см}^3} = 1,197 \text{ см}^3,$$

где $\rho_{\text{Sm}_2\text{O}_3}$ — плотность порошка оксида самария.

Удельная массовая активность самария в БК в i -й день, Бк/г:

$$a_{mi} = \frac{A_i}{m},$$

где m — масса стартового вещества в одном БК, $m = 9 \text{ г}$.

Для удобства вводят единицу измерения кюри на грамм [Ки/г], где 1 Ки = 3,7·10¹⁰ Бк. Тогда формулу для удельной массовой активности, Ки/г, можно переписать в виде

$$a_{mi} = \frac{A_i}{m \cdot 3,7 \cdot 10^{10}}.$$

Исследование динамики накопления изотопа Sm¹⁵³. В табл. 1 приведены результаты расчетов для шага решетки 250 мм.

Таблица 1. Значения коэффициента размножения в бесконечной среде и удельной массовой активности для шага решетки 250 мм

Концентрация эрбия, %	Обогащение топлива, %				
	2,6	2,8	3,2	3,4	3,6
0,2	$K_{\infty} = 1,17660$ $a_{m5} = 445,554$	$K_{\infty} = 1,19079$ $a_{m5} = 387,109$	$K_{\infty} = 1,23942$ $a_{m5} = 399,692$	$K_{\infty} = 1,24902$ $a_{m5} = 398,987$	$K_{\infty} = 1,26121$ $a_{m5} = 401,544$
0,4	$K_{\infty} = 1,15493$ $a_{m5} = 451,352$	$K_{\infty} = 1,17454$ $a_{m5} = 385,802$	$K_{\infty} = 1,22694$ $a_{m5} = 461,406$	$K_{\infty} = 1,23257$ $a_{m5} = 392,953$	$K_{\infty} = 1,24417$ $a_{m5} = 400,346$
0,6	$K_{\infty} = 1,13755$ $a_{m5} = 456,363$	$K_{\infty} = 1,16035$ $a_{m5} = 413,924$	$K_{\infty} = 1,20491$ $a_{m5} = 403,993$	$K_{\infty} = 1,20863$ $a_{m5} = 431,429$	$K_{\infty} = 1,23311$ $a_{m5} = 405,504$
0,8	$K_{\infty} = 1,12698$ $a_{m5} = 407,581$	$K_{\infty} = 1,15301$ $a_{m5} = 432,641$	$K_{\infty} = 1,19660$ $a_{m5} = 461,845$	$K_{\infty} = 1,19327$ $a_{m5} = 438,175$	$K_{\infty} = 1,20728$ $a_{m5} = 393,553$

Исходя из приведенной таблицы, необходимо выбрать такие параметры топлива, чтобы значение K_{∞} было больше единицы, а значение активности изотопа Sm¹⁵³ было максимально близким к требуемому (344 Ки/г). Таким образом, из анализа таблицы приходим к выбору варианта с обогащением топлива 2,8 % и содержанием в нем эрбия 0,4 %. При таких параметрах наблюдается активность самария очень близкая к требуемой, а также надкритичность полячейки. Избыточная реактивность в реакторе компенсируется стержнями СУЗ, которые в данной работе не рассматривались.

Однако значение активности остается по-прежнему довольно большим. На этот случай предусмотрена корректировка времени облучения по результатам расчета. Ядерные концентрации Sm¹⁵³ на каждые сутки облучения представлены ниже:

Сутки облучения	1	2	3	4	5
Ядерная концентрация Sm ¹⁵³ , ×10 ¹⁷ см ⁻³	1,94989	2,71013	3,64657	3,99547	4,66598

График распределения ядерной концентрации Sm^{153} в соответствии с периодом облучения представлен на рис. 3.

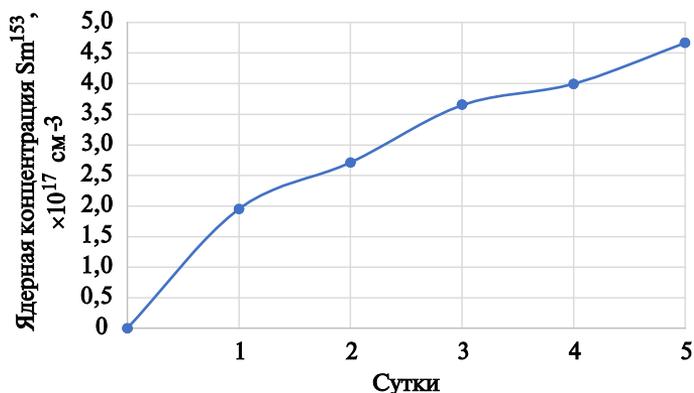


Рис. 3. Распределение ядерных концентраций Sm^{153}

Если мы пересчитаем активность при концентрации, которая получилась на четвертые сутки, то получим значение 330,361 Ки/г, что уже является меньше требуемого. Для получения заданной активности требуется облучать стартовое вещество около 4 сут и 6 ч, тогда ядерная концентрация будет составлять примерно $4,1605 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$.

Теперь проведем анализ активности при уменьшенном шаге графита. Результаты расчета для шага решетки 240 мм представлены в табл. 2.

Таблица 2. Значения коэффициента размножения в бесконечной среде и удельной массовой активности для шага решетки 240 мм

Концентрация эрбия, %	Обогащение топлива, %				
	2,6	2,8	3,2	3,4	3,6
0,2	$K_{\infty} = 1,16454$ $a_{m5} = 410,780$	$K_{\infty} = 1,17196$ $a_{m5} = 401,425$	$K_{\infty} = 1,21511$ $a_{m5} = 431,352$	$K_{\infty} = 1,24163$ $a_{m5} = 340,7119$	$K_{\infty} = 1,27347$ $a_{m5} = 369,911$
0,4	$K_{\infty} = 1,15705$ $a_{m5} = 439,784$	$K_{\infty} = 1,16442$ $a_{m5} = 420,114$	$K_{\infty} = 1,19984$ $a_{m5} = 474,321$	$K_{\infty} = 1,21543$ $a_{m5} = 431,026$	$K_{\infty} = 1,25133$ $a_{m5} = 443,798$
0,6	$K_{\infty} = 1,12640$ $a_{m5} = 448,776$	$K_{\infty} = 1,14042$ $a_{m5} = 482,942$	$K_{\infty} = 1,18832$ $a_{m5} = 412,246$	$K_{\infty} = 1,20574$ $a_{m5} = 390,415$	$K_{\infty} = 1,22998$ $a_{m5} = 418,851$
0,8	$K_{\infty} = 1,11897$ $a_{m5} = 457,005$	$K_{\infty} = 1,13521$ $a_{m5} = 417,119$	$K_{\infty} = 1,16873$ $a_{m5} = 425,276$	$K_{\infty} = 1,17666$ $a_{m5} = 393,657$	$K_{\infty} = 1,19650$ $a_{m5} = 368,768$

Видно, что полученные результаты для шага 240 мм значительно отличаются от результатов для шага 250 мм. Это связано с большим количеством процессов, при которых эрбий в различных спектрах по-разному поглощает нейтроны. Также видно, что в основном своем большинстве активность стала выше по сравнению с предыдущими результатами. Это связано с тем, что замедлителя в зоне стало меньше и стартовое вещество за те же 5 суток облучается гораздо сильнее, т. е. при шаге решетки 240 мм спектр стал жестче. Наглядно это можно увидеть на рис. 4.

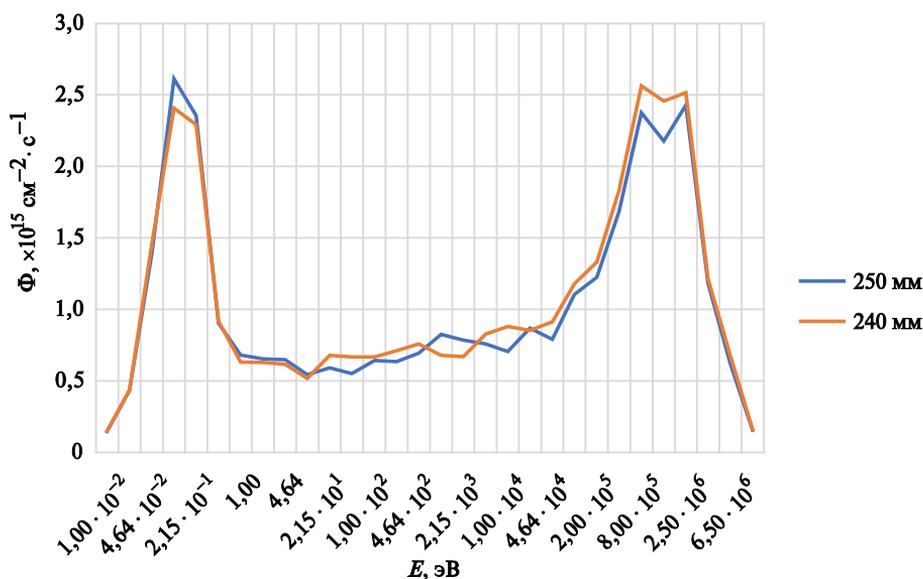


Рис. 4. Спектр нейтронов

В соответствии с табл. 2 активность, близкая к требуемой, получилась при обогащении топлива 3,4 % и содержании в нем эрбия 0,2 %. Также можно рассмотреть вариант с обогащением 3,6 % и содержанием эрбия 0,8 %. Однако это довольно большое обогащение топлива для канальных энергетических реакторов. Для наглядности будем рассматривать результаты при таких же параметрах топлива, как при шаге 250 мм (обогащение 2,8 % и содержание эрбия 0,4 %). Ядерные концентрации Sm^{153} на каждые сутки облучения представлены ниже:

Сутки облучения	1	2	3	4	5
Ядерная концентрация Sm^{153} , $\times 10^{17} \text{ см}^{-3}$	2,04689	2,71035	3,80844	4,71504	5,08095

График распределения ядерной концентрации Sm^{153} в соответствии с периодом облучения представлен на рис. 5.

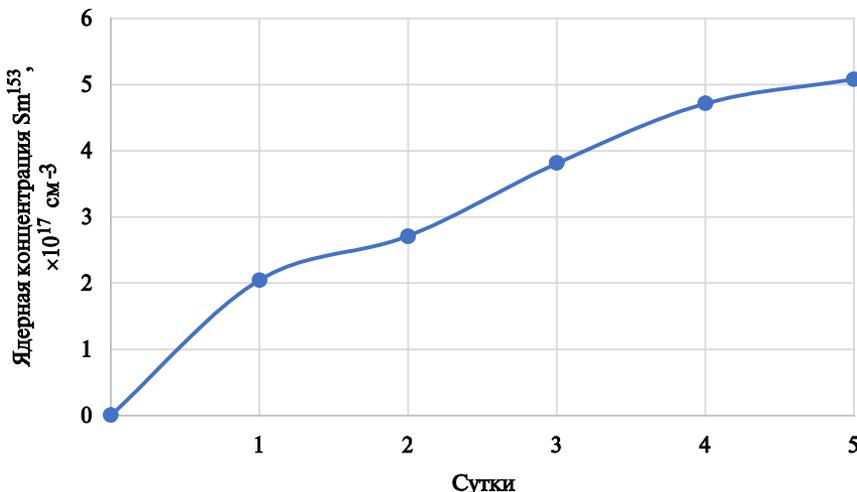


Рис. 5. Распределение ядерных концентраций Sm^{153}

Как было выяснено в прошлом расчете, для активности 344 Ки/г концентрация самария должна составлять примерно $4,1605 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Исходя из этих данных и рис. 5, получим, что при шаге 240 мм требуемая активность будет достигнута через 3 сут и 9 ч.

Заключение. В данной работе проведен нейтронно-физический расчет, в ходе которого в качестве исходных данных задавалась геометрия расчетных ячеек, их материальный состав, ядерные концентрации и другие расчетные параметры в соответствии с методикой расчетов в ПК MSU. По результатам серии расчетов были получены наборы нуклидных составов выгоревшего топлива в зависимости от исходных значений варьируемых параметров (обогащение топлива, содержание эрбия, шаг решетки активной зоны), а также активность самария и значения K_{∞} при варьировании этих параметров.

Таким образом, можно сделать вывод, что при уменьшении шага решетки самарий нарабатывается быстрее, чем при стандартном шаге решетки реактора РБМК. Это наталкивает на мысль о разработке двухцелевого реактора, в активной зоне которого будет подобран оптимальный шаг решетки для наработки ИМН и самария в частности, а также будет подобрано оптимальное обогащение топлива и концентрация эрбия в нем. При этом каналов для наработки продукции станет гораздо больше трех.

Исходя из всего вышперечисленного, можно сказать, что при таких условиях изотопов медицинского назначения будет нарабатываться гораздо больше, чем сейчас на реакторах РБМК-1000. Увеличение объемов производства позволит существенно сократить стоимость препаратов и помочь большому числу людей с онкологией. При этом реактор также сможет выполнять свои основные функции, а именно вырабатывать электроэнергию.

Литература

- [1] Шагинян Р.А., Коробейникова Л.В. Особенности наработки изотопов в быстрых реакторах. *Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерно-реакторные константы*, 2023, вып. 3. EDN YLGTAV
- [2] Черкашов Ю.М., ред. *Канальный ядерный энергетический реактор РБМК*. Москва, ГУП НИКИЭТ, 2006, 631 с.
- [3] Доллежалъ Н.А., Емельянов И.Я. *Канальный ядерный энергетический реактор*. Москва, Атомиздат, 1980, 208 с.
- [4] Петрусенко Ю.Т., Николайчук Л.И., Тутубалин А.И., Шепелев А.Г., Пономаренко Т.А. Нарботка $^{123-125}\text{I}$ медицинского назначения на циклотроне CV-28 при использовании теллурических мишеней. *Атомная энергия*, 2010, вып. 5, 284 с.
- [5] Борщев В.П., Жуков И.В., Мельников О.П., Рождественский М.И., Черкашов Ю.М., Бурлаков Е.В., Кватор В.М., Горбунов Е.К., Лебедев В.И., Фурсов А.Н., Шевченко В.Г. Кузнецов В.Ю., Миронов Ю.И., Романенко В.И., Ряховских В.И. Возможности наработки радионуклидов на АЭС с РБМК. *Атомная энергия*, 2003, вып. 6, 450 с.
- [6] Цыб А.Ф., Крылов В.В., Дроздовский Б.Я., Карякин О.Б., Бирюков В.А., Медведев В.Н., Смирнова И.А., Воробьева С.Л. Радионуклидная терапия самарием-оксабиформом, ^{153}Sm при раке молочной и предстательной железы с метастазами в кости. *Сибирский онкологический журнал*, 2006, вып. 3, с. 8–17.
- [7] Сухих А.В., Сагалов С.С., Павлов С.В. *Топливо канальных кипящих реакторов большой мощности: проблемы и решения*. Димитровград, ДИТИ НИЯУ МИФИ, 2017, 184 с.
- [8] Алексеев Н.И. *Программа MCU для расчета методом Монте-Карло нейтронно-физических характеристик ядерных реакторов. Геометрический модуль SCG-8*. Москва, РНЦ КИ, 1995, 60 с.

Поступила в редакцию 07.05.2024

Ильин Артем Сергеевич — студент кафедры «Ядерные реакторы и установки», МГТУ им. Н.Э. Баумана, Москва, Россия.

Рябинин Семен Андреевич — студент кафедры «Ядерные реакторы и установки», МГТУ им. Н.Э. Баумана, Москва, Россия.

Семишин Виктор Вадимович — старший преподаватель кафедры «Ядерные реакторы и установки», МГТУ им. Н.Э. Баумана, Москва, Россия.

Ссылку на эту статью просим оформлять следующим образом:

Ильин А.С., Рябинин С.А., Семишин В.В. Анализ накопления медицинских изотопов в активной зоне канального реактора на примере SM-153. *Политехнический молодежный журнал*, 2024, № 04 (93). URL:

<https://ptsj.bmstu.ru/catalog/pmc/nuc/988.html>

ANALYSIS OF THE MEDICAL ISOTOPES ACCUMULATION IN THE PRESSURE-TUBE REACTOR CORE ZONE USING THE SAMARIUM-153 EXAMPLE

A.S. Ilyin

artemilin01@mail.ru

S.A. Ryabinin

ryabinin18022000@mail.ru

V.V. Semishin

semishin@bmstu.ru

SPIN code: 8913-1645

Bauman Moscow State Technical University, Moscow, Russian Federation

The paper analyzes accumulation dynamics of the samarium-153 (Sm^{153}) isotope in the active zone of a pressure-tube nuclear reactor with the graphite moderator. Computation is performed in two stages. At the first stage, the nuclide composition of fuel burned to 15 MW-day/kg is determined. This is necessary to take into account the fact that stale fuel surrounds the channel with the irradiation device. At the second stage, the Sm^{153} activity is found with the varying parameters, and its accumulation rate is determined. Results of the computational simulation demonstrate that the accumulation activity and rate are affected by such factors as fuel enrichment, burnable absorber content (in this case, erbium) and the lattice pitch. The obtained results propose values of the variable parameters making it possible to intensify production of isotopes in the medical purposes.

Keywords: radioisotopes, pressure-tube reactor, nuclear medicine, medical purpose isotopes, radiopharmaceuticals, samarium-153

Received 07.05.2024

Ilyin A.S. — Student, Department of Nuclear Reactors and Installations, Bauman Moscow State Technical University, Moscow, Russia.

Ryabinin S.A. — Student, Department of Nuclear Reactors and Installations, Bauman Moscow State Technical University, Moscow, Russia.

Semishin V.V. — Senior Lecturer, Department of Nuclear Reactors and Installations, Bauman Moscow State Technical University, Moscow, Russia.

Please cite this article in English as:

Ilyin A.S., Ryabinin S.A., Semishin V.V. Analysis of the medical isotopes accumulation in the pressure-tube reactor core zone using the samarium-153 example. *Politekhnikeskij molodezhnyy zhurnal*, 2024, no. 04 (93). (In Russ.). URL: <https://ptsj.bmstu.ru/catalog/pmc/nuc/988.html>