



基于ADS超导直线加速器利用活化法测量p轰击^{nat}Mo靶的反应截面

报告人：孙慧

陈志强，韩瑞，田国玉，石福栋，张鑫，刘丙岩等

报告提纲



- 引言
- 活化实验
- 实验测量结果及分析
- 总结与展望



引言： ^{99m}Tc 及其同位素核数据需求

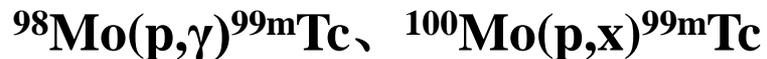
- 核医学显像技术是肿瘤早期诊断**最直接有效**的手段；
- ^{99m}Tc 衰变会发出**单一低能 γ 射线 (140.5 keV)**、辐射损伤小并有良好的显像分辨率，在全世界核医学放射性同位素中的应用比例达到 **80%** 以上；
- 受**核扩散风险**和**反应堆老化**等问题的影响，急需一种安全可靠的 ^{99m}Tc 生产方式。

● 实验

✓ 产生 ^{99}Mo ($^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$)



✓ 直接产生 ^{99m}Tc



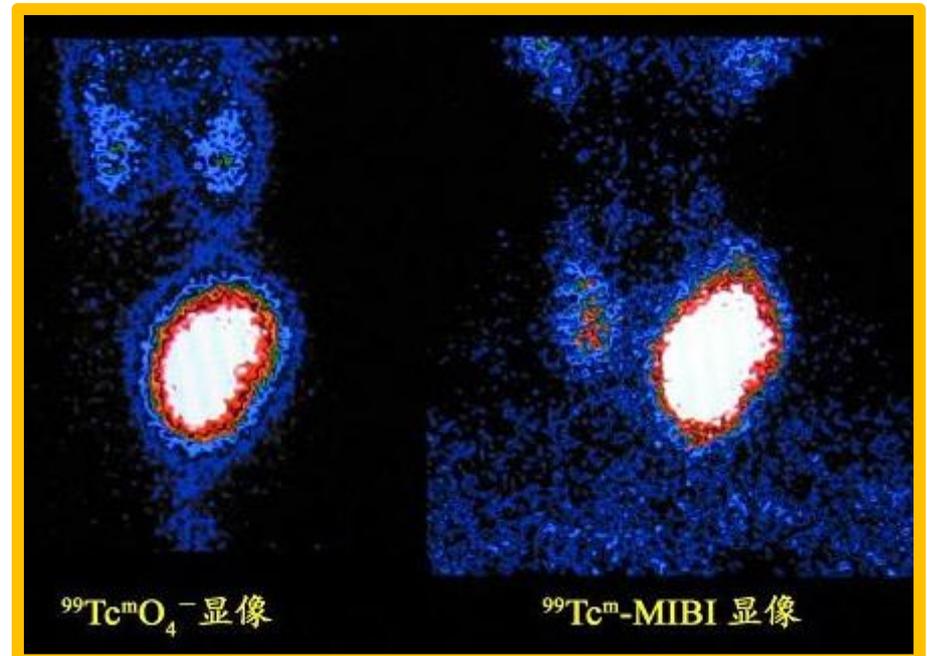
● 模型计算

✓ 理论模型计算

TALYS、STAPRE等

✓ 蒙卡程序模拟

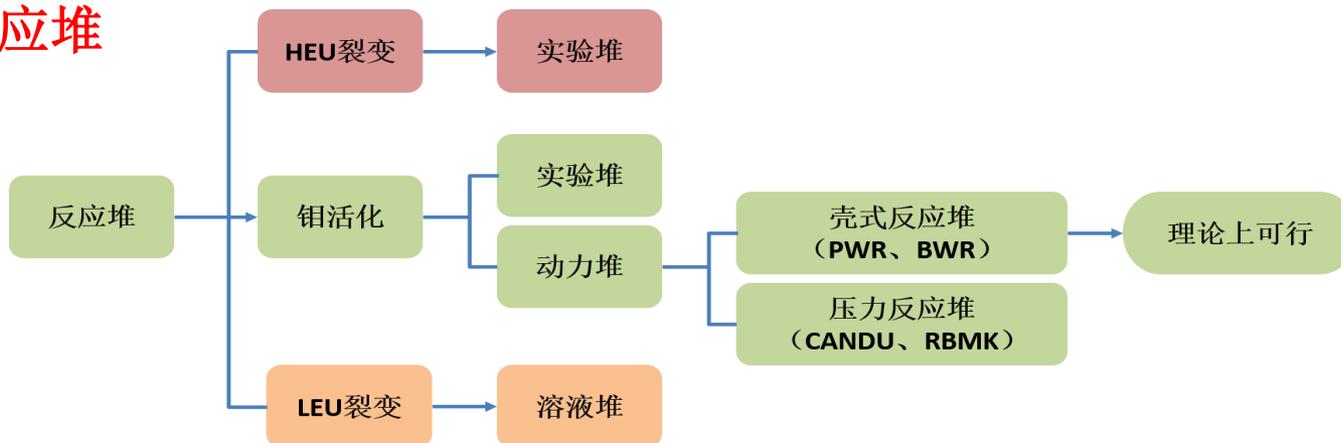
MCNP、FLUKA、GEANT4等



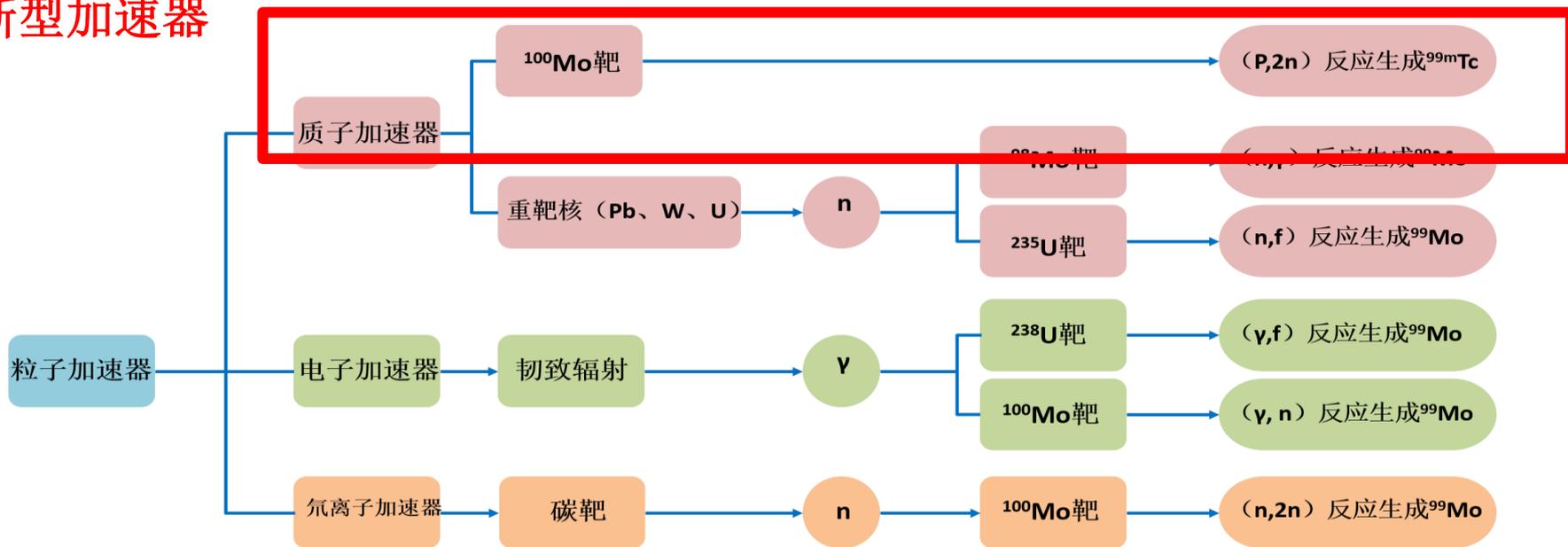
引言：^{99m}Tc生产研究现状



● 反应堆



● 新型加速器

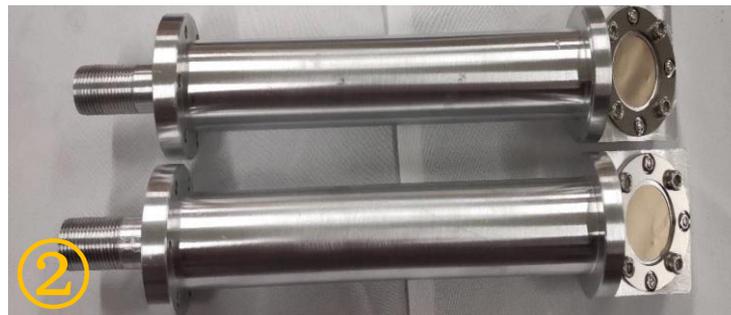


[1] 李紫薇, 韩运成等. 医用放射性同位素 ⁹⁹Mo/^{99m}Tc 生产现状和展望[J]. 原子核物理评论, 2019, 36(2):170-183.

活化实验：实验装置



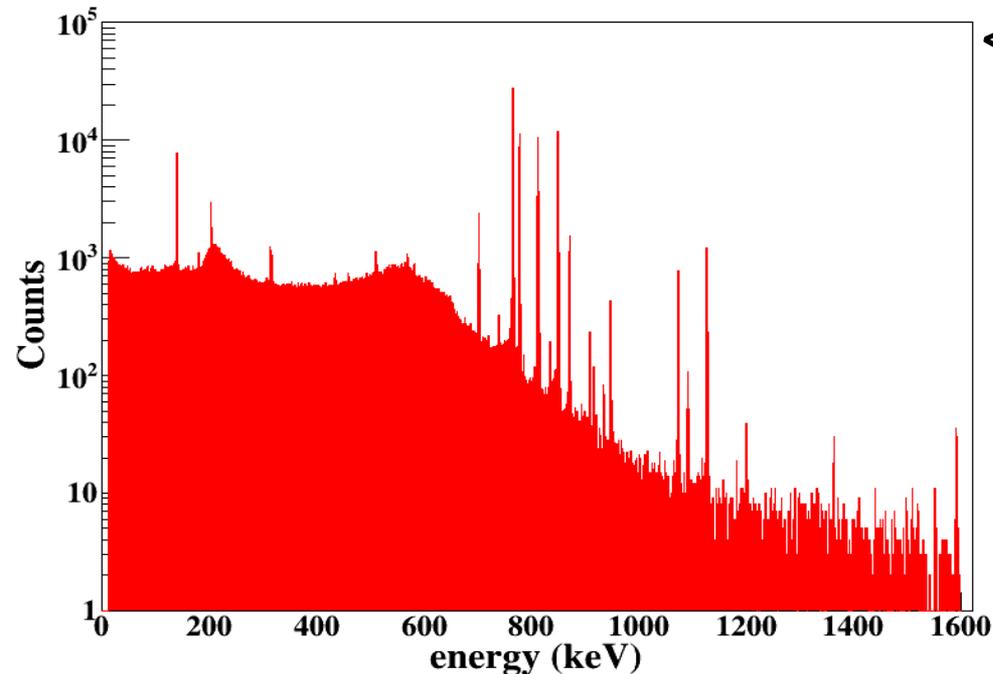
- ✓ 实验基于兰州近代物理研究所ADS超导直线加速器装置，利用活化法测量了质子束轰击后，样品的伽马谱；
- ✓ 质子束能量8~20MeV;流强100nA左右；
- ✓ ①辐照实验装置；②靶系统；③高纯锗探测器；④靶片。



活化实验：伽马谱



- ✓ 18 MeV质子束轰击^{nat}Mo靶，利用高纯锗探测器（HPGe）离线测量得到伽玛谱；
- ✓ 探头与样品距离：11cm；
- ✓ 通过GammaVision计数，并利用如下公式分析计算得到反应截面。



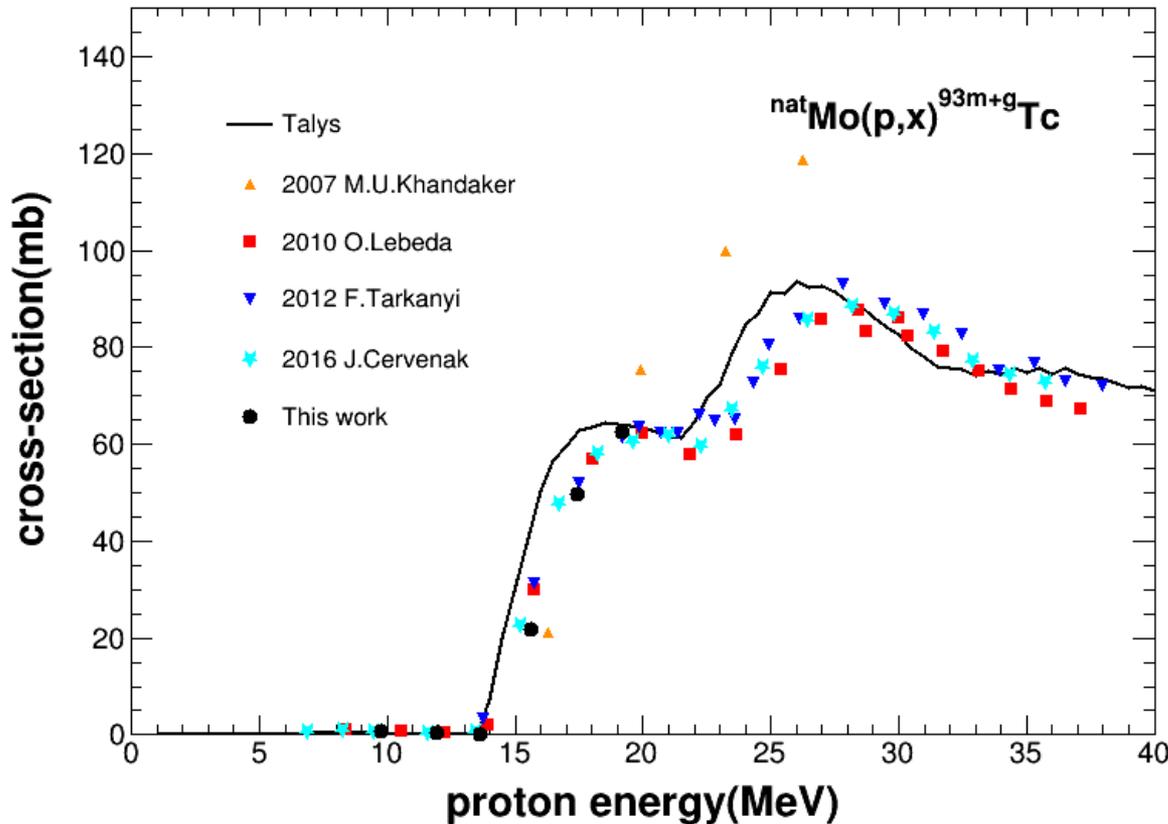
$$\langle \sigma \rangle = \frac{CPS \times \lambda}{N_0 \times \varphi \times \varepsilon_d \times I_\gamma (1 - e^{-\lambda t_i})(e^{-\lambda t_c})(1 - e^{-\lambda t_e})}$$

- a.* CPS是GammaVision对 γ 峰的净计数；
- b.* N_0 是靶片样品的单位面积数密度；
- c.* φ 是流强参数；
- d.* ε_d 是对应能量探测效率；
- e.* I_γ 是分支比；
- f.* t_i 、 t_c 、 t_e 分别是辐照时间，冷却时间以及测量时间

实验结果及分析: $^{93m+g}\text{Tc}$



- Mo 样品: ($\Phi 25 \text{ mm} \times 10 \mu\text{m}$), 实验测量 ^{93g}Tc 衰变特征 $\gamma 1362.947 \text{ keV}$, 采用 Talys2019 模型计算, 数据结果与实验数据库进行分析对比。



- Talys2019与实验截面数据整体符合较好;
- 本次实验截面与2016J.Cervenak、2012F.Tarkanyi、2010O.Lebeda在10-20MeV能量范围内实验数据基本一致;
- 2007M.U.Khandajer20MeV以上实验数据严重偏离;

Fig. 1. Cross-sections for the $^{nat}\text{Mo}(p, x)^{93m+g}\text{Tc}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

实验结果及分析： $^{93m+g}\text{Tc}$ 、 ^{93m}Tc 、 ^{93g}Tc



- 实验通过测量能量为**1362.947keV**特征 γ ,得到 $^{93m+g}\text{Tc}$, 采用Talys2019理论计算, 得到了 ^{93m}Tc 数据,利用实验数值以及理论数值计算得到了 ^{93g}Tc ;
- 对于（母核） ^{93m}Tc 半衰期为43.5min, （子核） ^{93g}Tc 半衰期为2.75h;

$$\sigma_{cum} = \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} f \sigma_1 + \sigma_2$$

- ✓ λ_1 , λ_2 分别是母核和子核的衰变参数;
- ✓ f 是由母核向子核的衰变参数, $f=0.766$;
- ✓ σ_1 、 σ_2 分别是反应产生母核与子核的截面大小。

实验结果及分析： ^{93m}Tc 、 ^{93g}Tc



- Mo 样品： $(\Phi 25 \text{ mm} \times 10 \mu\text{m})$ ，实验测量 ^{93g}Tc 衰变特征 $\gamma 1362.947 \text{keV}$ ，采用 Talys2019理论计算，数据结果与实验数据库进行分析对比。

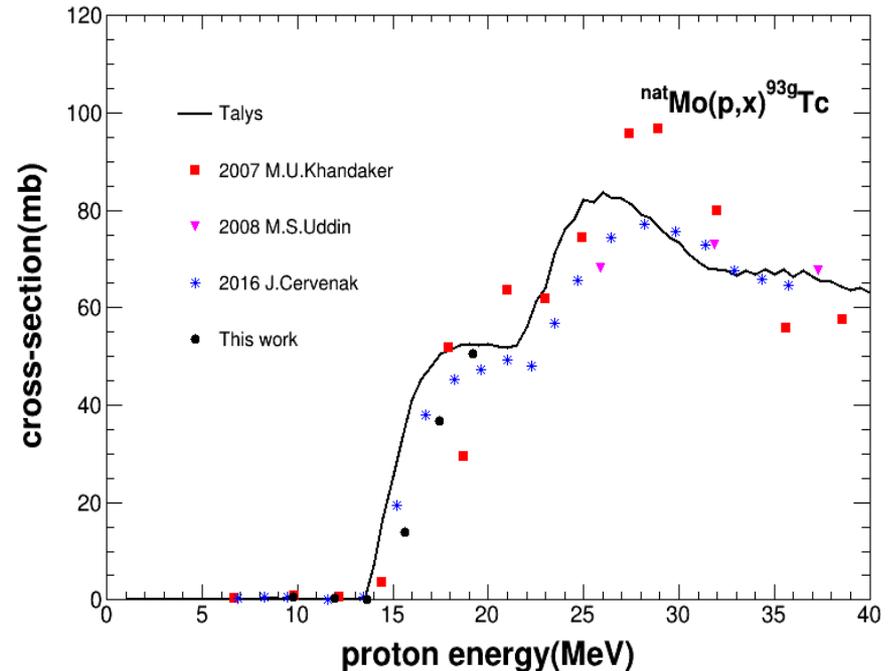
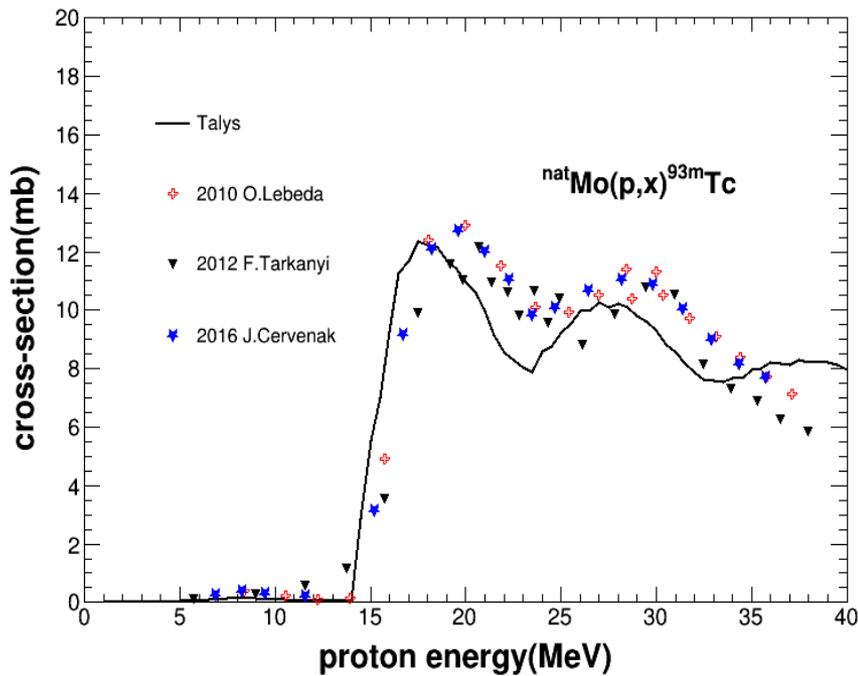
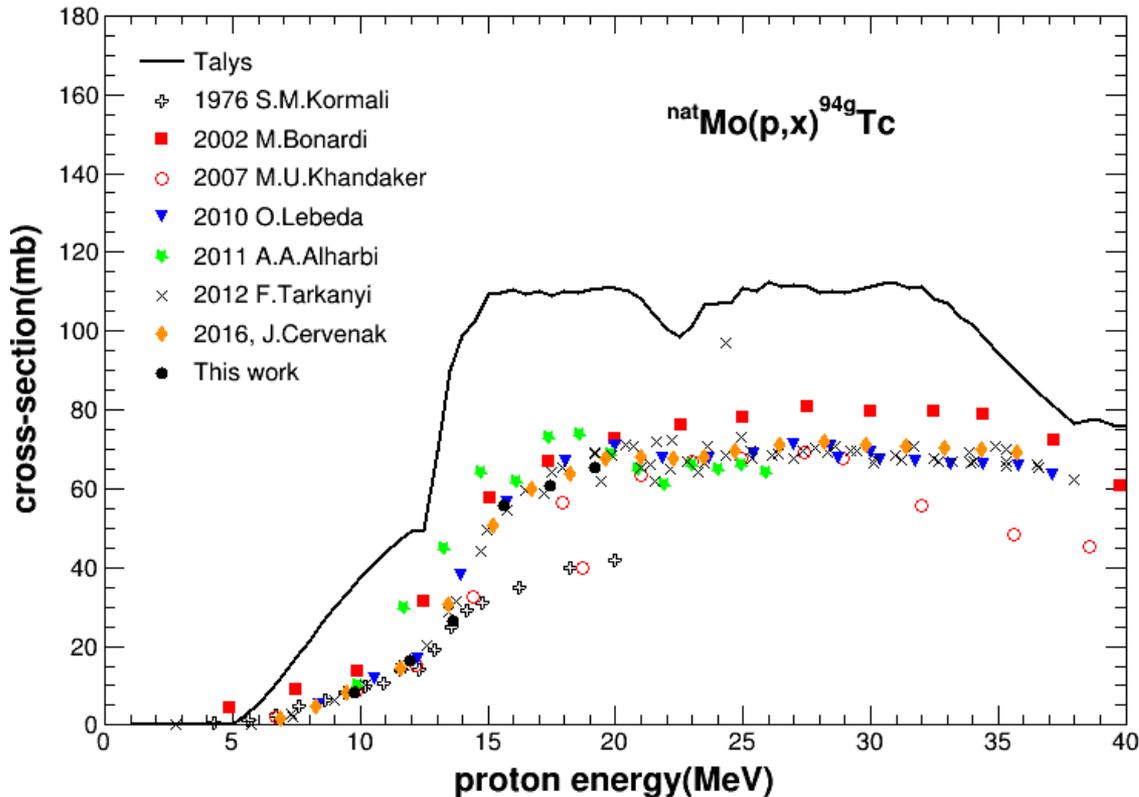


Fig. 2 Cross-sections for the $^{nat}\text{Mo}(p,x)^{93m}\text{Tc}$ 、 $^{nat}\text{Mo}(p,x)^{93g}\text{Tc}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

实验结果及分析： ^{94m}Tc



- Mo 样品： $(\Phi 25 \text{ mm} \times 10 \mu\text{m})$ ，实验测量 ^{94m}Tc 衰变特征 $\gamma 702.626 \text{ keV}$ ，采用 Talys2019理论计算，数据结果与实验数据库进行分析对比。



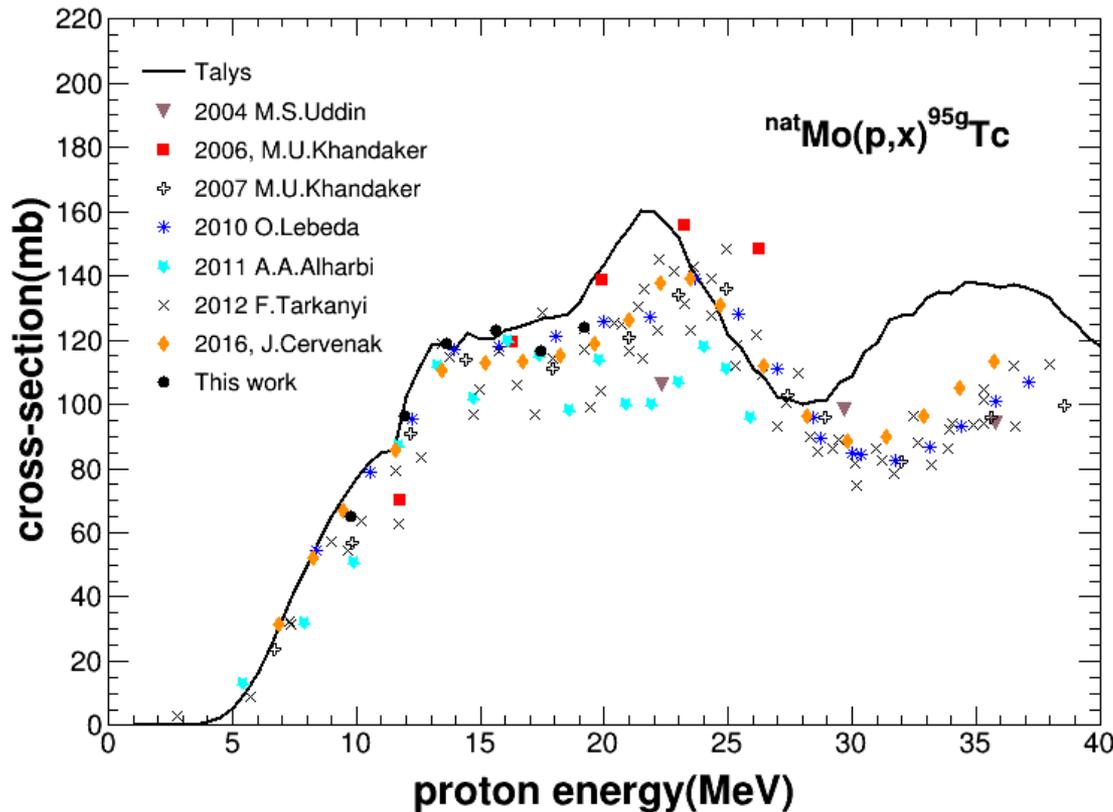
- Talys2019对反应截面在5-40MeV内有严重的高估；
- 本次实验截面与2016J.Cervenak、2010O.Lebeda在10-20MeV能量范围内实验数据基本一致；
- 1976S.M.Kormail、2007M.U.Khandajer、2011A.A.Alharbi在不同能量段内有不同程度的偏离；

Fig. 3. Cross-sections for the $^{nat}\text{Mo}(p,x)^{94m}\text{Tc}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

实验结果及分析： ^{95g}Tc



- Mo 样品：（ $\Phi 25\text{ mm} \times 10\mu\text{m}$ ），实验测量 ^{95g}Tc 衰变特征 $\gamma 765.789\text{keV}$ ，采用 Talys2019理论计算，数据结果与实验数据库进行分析对比。



- Talys2019反应截面在0-20MeV范围内与实验反应截面符合较好；
- 本次实验截面与2016J.Cervenak、2010O.Lebeda在10-20MeV能量范围内实验数据基本一致；
- 2011A.A.Alharbi实验数据整体偏低；

Fig. 4. Cross-sections for the $^{nat}\text{Mo}(p,x)^{95g}\text{Tc}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

实验结果及分析： ^{95m}Tc



- Mo 样品： $(\Phi 25 \text{ mm} \times 10 \mu\text{m})$ ，实验测量 ^{95m}Tc 衰变特征 $\gamma 204.117 \text{ keV}$ ，采用 Talys2019理论计算，数据结果与实验数据库进行分析对比。

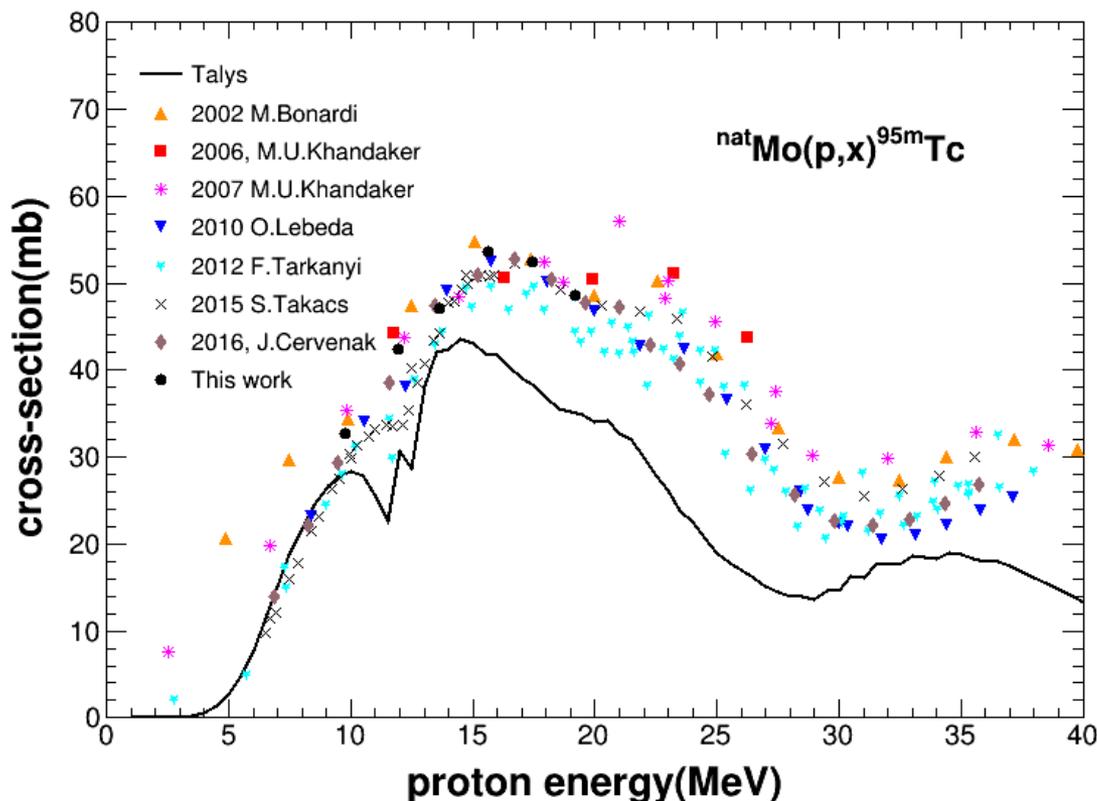


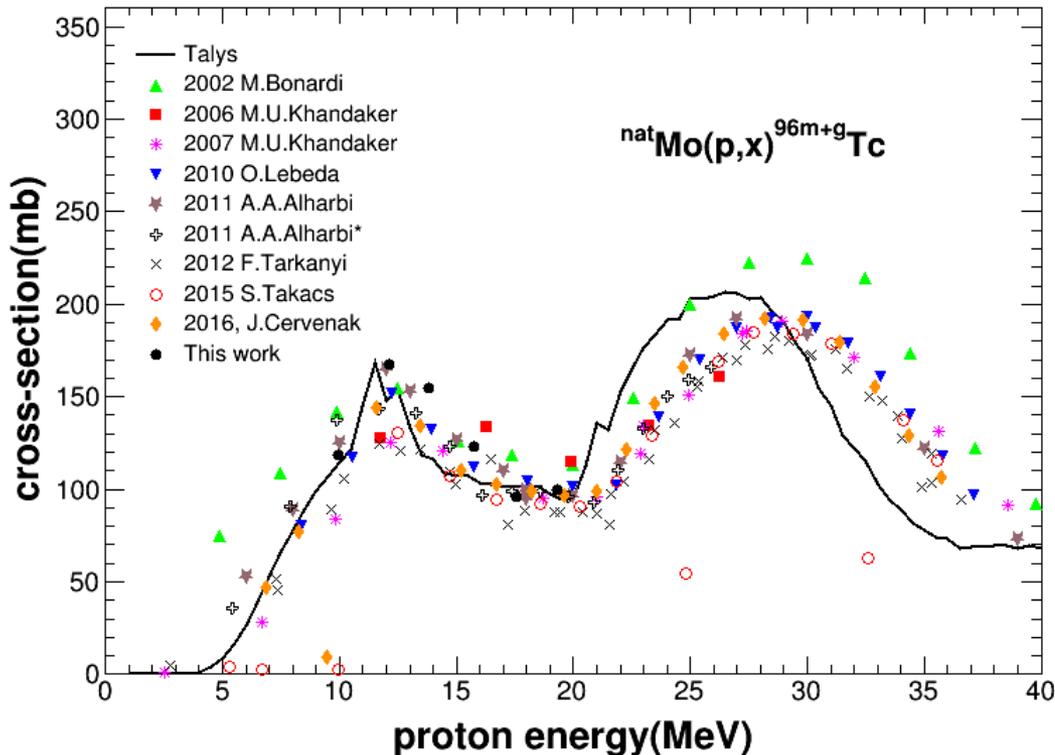
Fig. 5. Cross-sections for the $^{nat}\text{Mo}(p, x)^{95m}\text{Tc}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

- Talys2019与实验反应截面相比在10MeV以上有一个整体的低估；
- 本次实验截面在10-20MeV能量范围内与其他实验数据相比符合较好；
- 2002M. Bonardi、2006/2007M. U. Khandajer的数据在0-10MeV偏离理论值以及大部分实验值；

实验结果及分析： $^{96m+g}\text{Tc}$



- Mo 样品： $(\Phi 25 \text{ mm} \times 10 \mu\text{m})$ ，实验测量 ^{96g}Tc 衰变特征 $\gamma 788.224 \text{ keV}$ ，采用 Talys2019理论计算，数据结果与实验数据库进行分析对比。



- Talys2019反应截面在20MeV以上有一定的偏离；
- 本次实验截面在15MeV左右数值偏大；
- ^{96}Nb 衰变产生特征 $\gamma 788.224 \text{ keV}$ ；

Fig. 6. Cross-sections for the $^{nat}\text{Mo}(p, x)^{96m+g}\text{Tc}_{\text{tot}}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

实验结果及分析： ^{99m}Tc



- Mo样品： $(\Phi 25\text{ mm} \times 10\mu\text{m})$ ，实验测量 ^{99m}Tc 衰变特征 γ **140.511keV**，天然钼靶（ ^{92}Mo 14.84%、 ^{94}Mo 9.25%、 ^{95}Mo 15.92%、 ^{96}Mo 16.68%、 ^{97}Mo 9.55%、 ^{98}Mo 24.13%、 ^{100}Mo 9.63%），采用Talys2019理论计算，数据结果与实验数据库进行分析对比。

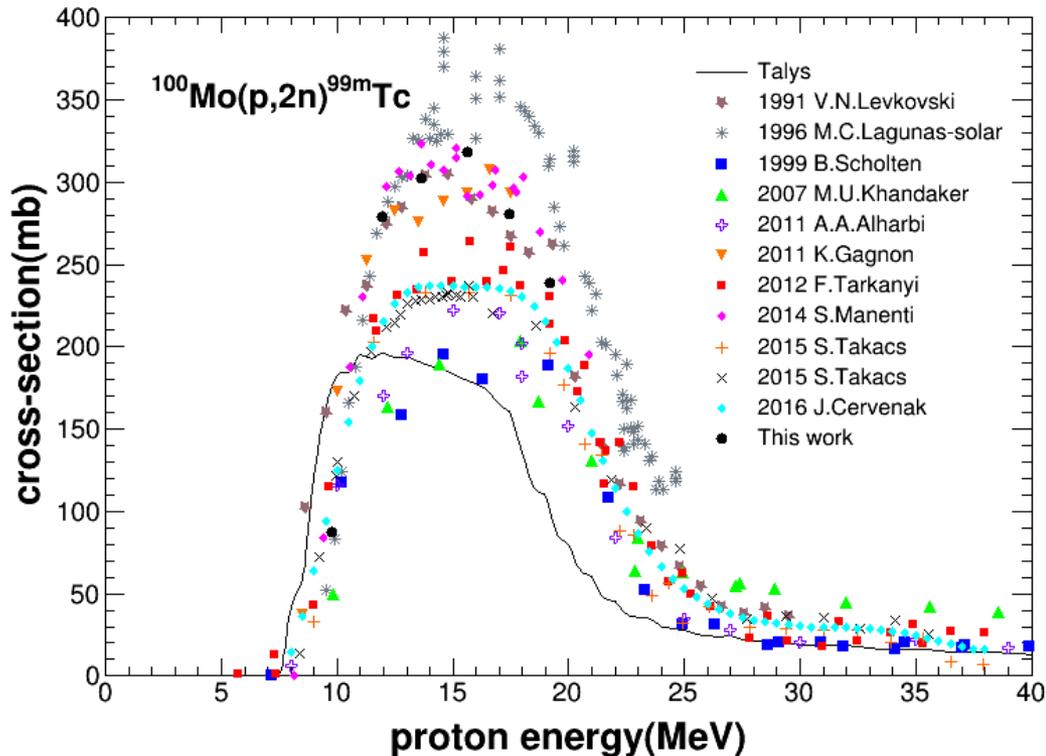


Fig. 7. Cross-sections for the $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99m}\text{Tc}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

- Talys2019与实验反应截面相比整体较低；
- ^{99m}Tc 反应截面实验数值之间差别较大，15MeV对应反应截面150~400mb均有分布，本次实验为310mb；
- 实验反应截面受到 $^{98}\text{Mo}(p,\gamma)^{99m}\text{Tc}$ 、 $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ 反应的影响，本次实验反应截面数值偏大；
- ^{90g}Nb 衰变产生的特征 γ 射线能量为**141.178keV**；

实验结果及分析： ^{99m}Tc



- 采用Talys2019理论计算，得到 $^{98}\text{Mo}(p,\gamma)^{99m}\text{Tc}$ 、 $^{100}\text{Mo}(p,x)^{99}\text{Mo}$ 理论数值。天然钼靶 (^{92}Mo 14.84%、 ^{94}Mo 9.25%、 ^{95}Mo 15.92%、 ^{96}Mo 16.68%、 ^{97}Mo 9.55%、 ^{98}Mo 24.13%、 ^{100}Mo 9.63%)。

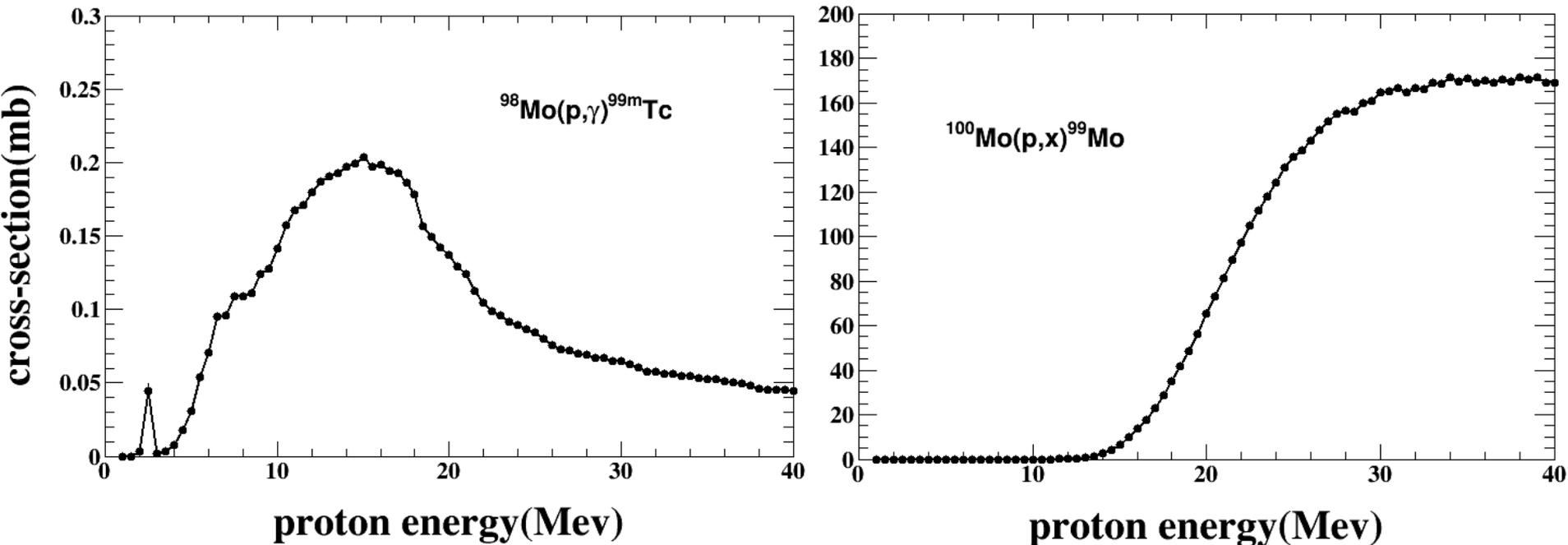


Fig. 8 Cross-sections for the $^{98}\text{Mo}(p,\gamma)^{99m}\text{Tc}$ 、 $^{100}\text{Mo}(p,d+pn)^{99}\text{Mo}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

实验结果及分析： ^{99m}Tc



- Mo 样品： $(\Phi 25 \text{ mm} \times 10 \mu\text{m})$ ，实验测量 ^{99m}Tc 衰变特征 $\gamma 140.511 \text{ keV}$ ，采用 Talys2019 理论计算，得到 $^{98}\text{Mo}(p,\gamma)^{99m}\text{Tc}$ 、 $^{100}\text{Mo}(p,x)^{99m}\text{Mo}$ 理论数值。

$$\sigma_{eff} (^{99m}\text{Tc}) = \sigma (^{99m}\text{Tc}) + \frac{P (^{99}\text{Mo}) \lambda (^{99}\text{Mo})}{\lambda (^{99}\text{Mo}) - \lambda (^{99m}\text{Tc})} \sigma (^{99}\text{Mo})$$

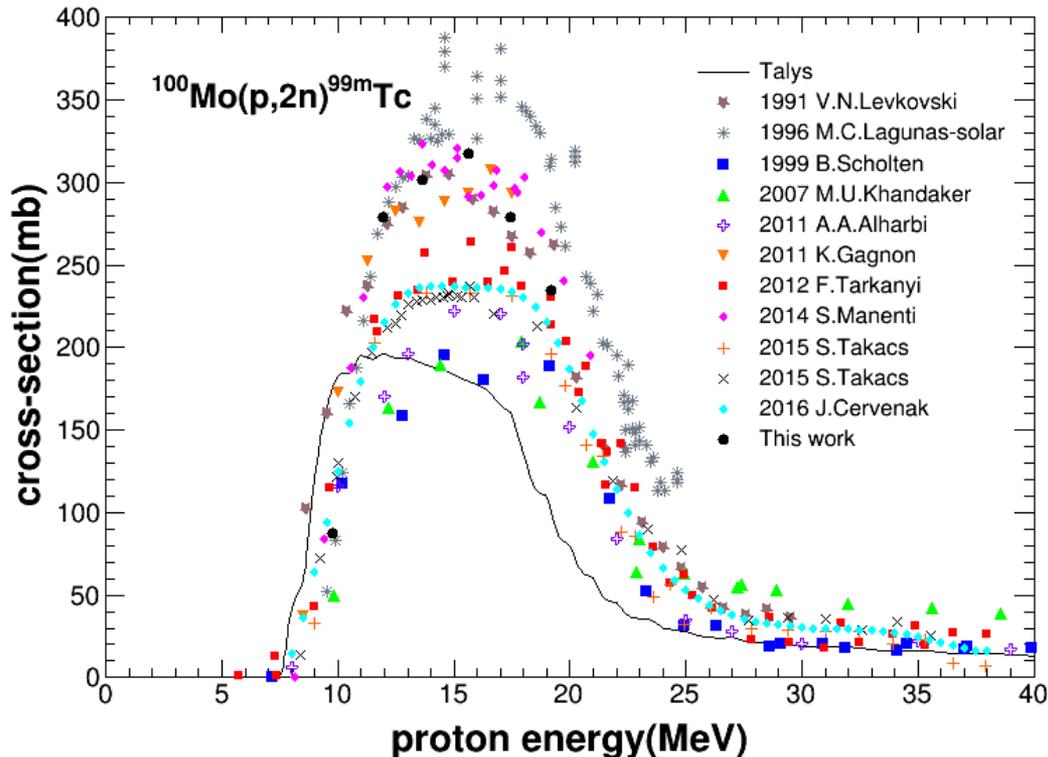
✓ P 是衰变参数， $P (^{99}\text{Mo}) = 0.876$;

[3] Qaim S.M, Sudár S, Scholten B, Koning A.J, Coenen H.H, Evaluation of excitation functions of $^{100}\text{Mo}(p,d+pn)^{99}\text{Mo}$ and $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99m}\text{Tc}$ reaction...[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2014 :101 - 113 .

实验结果及分析： ^{99m}Tc



修正后的 $^{100}\text{Mo}(p, 2n)^{99m}\text{Tc}$ 反应截面



- 修正后的反应截面变化 $<1\%$;
- 其中 ^{99}Mo 贡献最大;

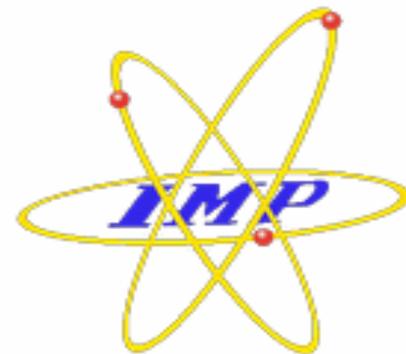
- 小结：本次实验 $^{100}\text{Mo}(p, 2n)^{99m}\text{Tc}$ 反应截面在 16MeV 左右可达到最大;
- 此外， ^{90g}Nb 特征 γ 射线能量 **141.178keV** ，但反应阈值为 **22MeV** 。

Fig. 9. Cross-sections for the $^{100}\text{Mo}(p, 2n)^{99m}\text{Tc}$ reactions compared with previously published data and prediction of the TALYS code.

总结与展望



- 基于兰州近代物理研究所ADS超导直线加速器研究了8-20MeV质子轰击天然钼靶产生 $^{93m+g}\text{Tc}$ 、 ^{93m}Tc 、 ^{93g}Tc 、 ^{94m}Tc 、 ^{95g}Tc 、 ^{95m}Tc 、 $^{96m+g}\text{Tc}$ 、 ^{99m}Tc 的反应截面数据。并利用**Talys2019**进行理论计算，与实验数据进行了分析对比。
 - ✓ 实验截面数据较好的符合了现有实验数据以及理论数据，为医用同位素的生产起到了一定的参考作用；
 - ✓ 某些核素截面数据存在一些**差异**，需要进一步的优化计算。
 - ✓ 由于测量累计时间的问题，本次实验**没有监测到 ^{99}Mo 的特征 γ 射线**，希望开展后期实验继续完善。
- 基于这些研究基础，希望下一步能扩展到更宽的能量区间，考虑多种条件下反应截面，更好的满足医用同位素生产需求。



恳请批评指正

