

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

2336/82

145-82

P6-82-93

В.Доберенц, Донг Дык Нян, Р.Драйер,
М.Миланов, Ю.В.Норсеев, В.А.Халкин

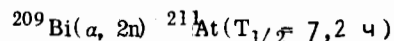
ПОЛУЧЕНИЕ ПРЕПАРАТОВ АСТАТА
В РАСТВОРАХ ЗАДАННОГО СОСТАВА
С ВЫСОКОЙ УДЕЛЬНОЙ (ОБЪЕМНОЙ)
АКТИВНОСТЬЮ

Направлено в журнал "Radiochemical and
Radioanalytical Letters".

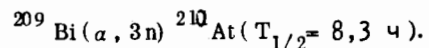
1982

Астат - нестабильный тяжелый галоген - интересный объект исследований для ядерной физики, радиохимии и биологии. Возможно, что в медицине найдут применение в качестве эффективных радиотерапевтических и иммунологических средств препараты, содержащие ^{211}At /1,2/.

Один из путей получения долгоживущих изотопов астата для радиохимии и биологии - ядерные реакции



и



/рис.1/. Относительно большие количества астата можно синтезировать в этих реакциях при облучении мишеней ионами $^4\text{He}^{2+}$ /36 МэВ/ на изохронном циклотроне У-200 Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. Исходя из этой возможности была намечена программа работ с астатом, для реализации которой требовалась хорошо воспроизводимая методика получения чистых препаратов элемента высокой удельной объемной активности.

Оптимальным способом выделения астата из висмута, по нашему мнению, является дистилляция элемента из расплавленного металла /4-8/. Из газовой фазы астат адсорбировался на платине и серебре /4,5/, конденсировался на стекле или замороженных растворах при температуре жидкого азота /4,6/, поглощался в растворах Na_2SO_3 или NaOH /7/. Ни одна из известных методик, к сожалению, не удовлетворяла нашим требованиям к качеству полученных препаратов, выходу астата, трудоемкости и т.д. Поэтому мы были вынуждены разработать собственный вариант методики, в котором использовали дистилляцию астата из висмута в атмосфере гелия /5/ в сочетании с адсорбцией элемента на серебре /4/ из газового потока и последующую перегонку астата в небольшие объемы растворов заданного состава в заполненной воздухом ампуле.

Настоящая работа посвящена описанию деталей методики и анализу полученных результатов.

Мишени были приготовлены вакуумным /~ 10 Тор/ напылением висмута /температура 1000-1300°C / на массивные медные подложки, что создавало идеальный тепловой контакт между металлами. Поверхность, покрытая висмутом, имела форму эллипса площадью 6 см². Ионы $^4\text{He}^{2+}$ /36 МэВ/ налетали на мишень под

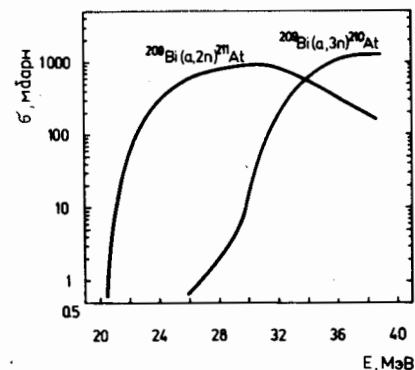
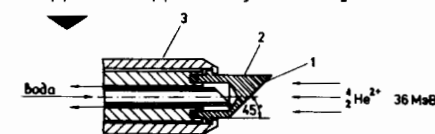


Рис.1. Функции возбуждения реакций $(\alpha, 2n)$ и $(\alpha, 3n)$ на висмуте /3/.

Рис.2. Схема конструкции головки пробника для облучения висмута пучком α -частиц ускорителя У-200. 1 - слой висмута, 2 - медная подложка, 3 - пробник.



углом 45°, благодаря чему пробег α -частиц в висмуте был около 150 мг/см² при толщине слоя металла 100-110 мг/см². Такие условия облучения теоретически позволяют получать до 3 мКи/мкА·ч $^{210}, ^{211}\text{At}$. В препарате должны также быть небольшие количества ^{209}At , который образуется при $E_{\alpha} \geq 34$ МэВ.

Мишени при облучении были закреплены на пробнике, конструкция головки которого схематически показана на рис.2. Эффективный отвод тепла от мишени обеспечивался водяным охлаждением ее внутренней полости: при максимальном в наших экспериментах токе ионов около 15 мкА после 10-минутной экспозиции слой висмута не имел видимых изменений.

Химическую переработку облученной мишени начинали с тщательной отмывки ее поверхности от следов возможных органических загрязнений четыреххлористым углеродом и ацетоном. Это была обязательная операция, без которой мы не могли добиться воспроизводимости результатов. Промытая мишень загрузалась в пробирку из нержавеющей стали с геометрической тефлоновой крышкой. Через крышку по центру пробирки проходила стеклянная трубка, заканчивающаяся цилиндрической воронкой с внутренним диаметром на 1-1,5 мм больше диаметра мишени. Воронка накрывала мишень так, как это показано на рис.3. В пробирку подавали гелий со скоростью 100 мл/мин и после 10-15-минутной отмывки от воздуха помещали ее в трубчатую печь, где мишень нагревалась до ~560°C. Поток гелия в узком зазоре между воронкой и мишенью исключал диффузию паров астата в пробирку и уносил их в трубку, где астат адсорбировался на серебряной фольге. Для этой цели в трубку вкладывали две разделенные тампоном из кварцевой ваты полоски серебряной фольги размером 0,01x5x50 мм. Они были расположены в температурных зонах 370-230°C и 230-130°C /рис.3/. Через 10 минут после начала нагрева мишени астат начинал испаряться из висмута, а через

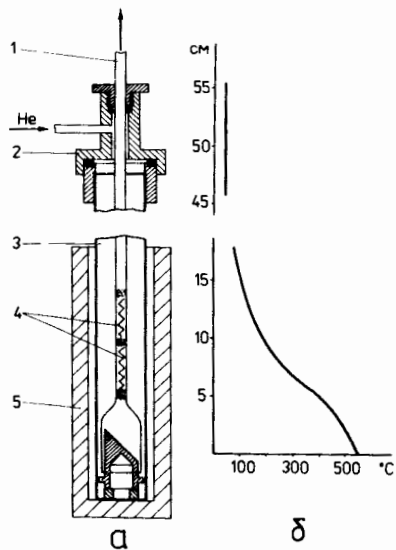


Рис.3. а/ Прибор для дистилляции астата из расплавленного висмута. 1 - стеклянная трубка с цилиндрической воронкой, 2 - тефлоновая крышка, 3 - пробирика из нержавеющей стали, 4 - серебряная фольга, 5 - цилиндрическая печь. б/ Градиент температуры в стеклянной трубке с цилиндрической воронкой.

четверть часа после начала дистилляции активность на участке трубки с серебром переставала нарастать. Весь аstat, извлеченный из газового потока серебром, находился на первой половине нижней полоски фольги. Активность верхней - контрольной - полоски фольги была на четыре порядка меньше.

При выбранных нами условиях дистилляции аstat, по-видимому, практически полностью испарялся из расплавленного висмута. В оставшихся корольках металла гамма-спектральный анализ не обнаруживал линий, характерных для изотопов астата.

Препараты адсорбированного на серебре астата служили исходными для приготовления аstatсодержащих водных растворов различного заданного состава. Для этого в закрытом объеме - в толстостенной стеклянной ампуле /рис.4а/ аstat испарялся с серебра и поглощался в растворе. Чтобы предохранить раствор от нагревания, ампула устанавливалась в гнездо охлаждаемого водой штатива. Верхняя часть ампулы с препаратом астата нагревалась до 500°C в трубчатой печи. Изменение температуры по ее длине показано на рис.4б. За 30 минут дистилляции в замкнутом объеме 95-98% астата конденсировалось в водном растворе. Таким способом были получены щелочные, нейтральные и кислые растворы астата объемом 30-100 мкл и удельной активностью до 1000 мКи/мл, в которых элемент находился в форме астатаида, гидратированных атомов астата, одновалентного катиона и хлоридных комплексов.

Дистилляцию астата в закрытом объеме нельзя применять для получения его органических растворов, так как происходит пиролиз паров растворителей на нагретом серебре. В тех случаях, когда для последующих синтезов требовались безводные растворы элемента, дистилляцию проводили в сухой ампуле. Аstat конден-

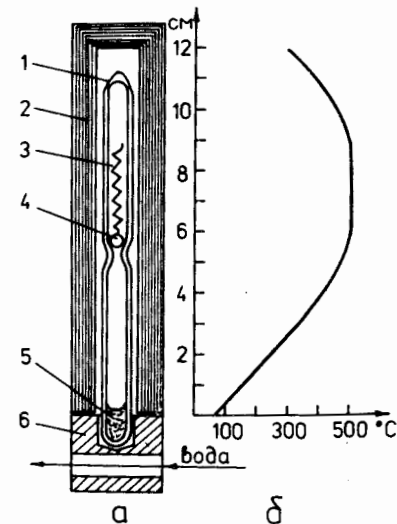


Рис.4. а/ Схема устройства для перегонки астата с серебра в водный раствор в закрытом объеме. 1 - стеклянная ампула, 2 - трубчатая печь, 3 - серебряная фольга, 4 - стеклянный шарик, 5 - водный раствор, 6 - охлаждаемый водой штатив. б/ Изменение температуры в трубчатой печи.

сировался на стекле холодной части ампулы, откуда смывался, например, бензолом, бромбензолом или аминами^{9,10/}.

Разработанный нами вариант методики сухой переработки висмутовой мишени состоит из предельно простых операций, которые легко выполняются /в том числе и отпайка ампул/ с помощью дистанционного инструмента за биологической защитой. Для получения необходимых препаратов астата требуется не более двух часов. Заметные потери астата в процессе выделения и концентрирования связаны лишь с неполным его испарением с серебряной фольги и не превышают 5%.

Качество полученных препаратов астата делает их исключительно удобными для проведения различных экспериментов, в том числе по синтезу аstatорганических соединений с их последующей хроматографической идентификацией^{9-11/} и по изучению электрофоретической подвижности ионов астата в свободных электролитах^{12/}.

Мы полагаем, что наша методика пригодна также и для получения медицинских препаратов астата, например, стерильных аstatсодержащих физиологических растворов.

В заключение авторы приносят глубокую благодарность М.Дупаку, А.С.Жучковой и Г.Доберенц за техническую помощь в проведении экспериментов и оформлении работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Friedman A.M. et al. Inter.J.Nucl.Medicine and Biology, 1977, 4, No.3/4, p. 219.
2. Neirinckx R.O. et al. Symp.New Develop. Radiopharm. Leb. Compds, Copenhagen, 1973, IAEA/SM-171/73.
3. Ramler W.J. et al. J.Phys.Rev., 1959, 114, p. 154.

4. Appel'man E.H. UCRL-9025, 1960.
5. Kelly E.L., Segre E. J.Phys.Rev., 1949, 75, p. 999.
6. Meyer G.J., Rossler K. Radiochem.Radioanal Letters, 1976, 25, p. 377.
7. Aaij C. et al. Inter.J.Appl.Radiat.Isotopes, 1975, 26, p. 25.
8. Jonson G.L. et al. J.Chem.Phys., 1949, 17, p. 1.
9. Vasaros L. et al. Radiochem.Radioanal.Letters, 1981, 47(5), p. 313.
10. Vasaros L. et al. Radiochem.Radioanal.Letters. 1981, 47(6), p. 403.
11. Вашарош Л. и др. ОИЯИ, Р12-80-439, Дубна, 1980.
12. Драйер Р. и др. ОИЯИ, Р6-11548, Дубна, 1978.

Доберенц В. и др. Получение препаратов астата в растворах заданного состава с высокой удельной /объемной/ активностью Р6-82-93

Выделение астата из облученного альфа-частицами висмута проводилось методом отгонки из расплава мишени в токе гелия. Из газовой фазы астат улавливался и осаждался на серебряную фольгу.

Для получения препаратов астата последний испарялся с серебрянной фольги в растворы заданного состава. Были получены щелочные, нейтральные и кислые растворы астата объемом 30-100 мкл с удельной активностью до 1000 мКи/мл.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982

Doherentz V. et al. Preparation of Astatine of High Specific Activity in Solutions of a Given Composition Р6-82-93

Separation of astatine has been carried out by distillation from molten metallic bismuth irradiated with α -particles, in helium flow. Astatine has been adsorbed from the gas phase onto a silver foil and then distilled into solutions of a given composition. By this method alkaline, neutral and acidic solutions of a specific activity up to 1000 mCi/ml (37 GBq/ml) in a volume of 30-100 μ l could be obtained.

The investigation has been performed at the Laboratory of the Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1982

Перевод О.С.Виноградовой.