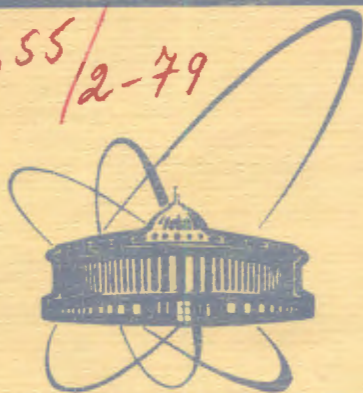


2255/2-79



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

11/41-79

12 - 12239

Л-33

Н.А.Лебедев, Хан Хен Мо, В.А.Халкин

ПОЛУЧЕНИЕ

СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИХ ПРЕПАРАТОВ

168

Tm

1979

12 - 12239

Н.А.Лебедев, Хан Хен Мо, В.А.Халкин

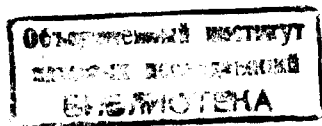
ПОЛУЧЕНИЕ

СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИХ ПРЕПАРАТОВ

168

Тм

Направлено в журнал "Радиохимия"



Лебедев Н.А., Хан Хен Мо, Халкин В.А.

12 - 12239

Получение спектрометрических препаратов ^{168}Tm

Исследовалась возможность получения спектрометрических препаратов ^{168}Tm , образующегося при облучении эрбия протонами с энергией около 100 МэВ. Разработана методика двухстадийного экстракционно-хроматографического разделения макро- и микроколичеств элементов с последующим концентрированием и очисткой тулия на катионитной микроколонке, позволяющая выделить 85±90% радиотулия, практически свободного от загрязнений другими лантанидами, из мишени весом 1,8 г. Сечения образования ^{168}Tm и ^{167}Tm в реакциях $\text{Er}(p, xn)\text{Tm}$ составляют $4,0 \pm 0,4$ и $8,8 \pm 0,9$ мбарн, соответственно. Выход ^{168}Tm по сравнению с его выходом из тантала, облученного протонами 660 МэВ, увеличивается в 7-10 раз, а относительно ^{167}Tm - в 50-70 раз.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1979

Lebedev N.A., Han Hen Mo, Khalkin V.A.

12 - 12239

Production of Spectrometrical Preparations of ^{168}Tm

The possibility to produce the spectrometrical preparations of ^{168}Tm from erbium target irradiated by protons with the energy of about 100 MeV has been investigated. Methods of two-stage extraction chromatographic separation were developed for macro- and microquantities of these elements with following concentration and purification of thulium by using the cationic microcolumn. These allow one to extract from the target 85-90% of radiothulium practically free from the contamination of another lanthanides. The values of cross-sections for the ^{168}Tm and ^{167}Tm formation in the $\text{Er}(p, xn)\text{Tm}$ reactions obtained are $4,0 \pm 0,4$ and $8,8 \pm 0,9$ mb, respectively. The yield of ^{168}Tm compared with that one from tantalum irradiated by protons of 660 MeV increases by 7-10 times and, relatively, of ^{167}Tm by 50-70 times.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1979

С помощью методов ядерной спектроскопии хорошо изучены свойства большинства нейтронодефицитных изотопов тулия 167 . Одно из исключений - наиболее долгоживущий тулий-168 / $T_{1/2} = 85$ дн./ . В реакциях расщепления тантала протонами 660 МэВ сечение образования ^{168}Tm по нашим определениям, около 0,5 мб, что на два порядка меньше сечения ^{167}Tm / $T_{1/2} = 9,25$ дн./ 167 . Такое соотношение сечений не позволяет получить, даже после электромагнитной масс-сепарации, препараты ^{168}Tm , достаточно чистые и интенсивные для измерения спектров электронов внутренней конверсии.

Относительные выходы ^{168}Tm должны быть значительно выше при его образовании в ядерных реакциях $\text{Er}(p, xn)\text{Tm}$. Этот путь получения нуклида, в принципе, несколько сложнее, чем из тантала, вследствие необходимости разделения макро- и ультрамикроколичеств двух соседних редкоземельных элементов /р.з.э./ . Но имеющийся положительный опыт выделения тербия из гадолиния и прометия из неодима 137 методом экстракционной хроматографии с ди-/2-этилгексил/ ортофосфорной кислотой /Д2ЭГФК/ в качестве стационарной фазы позволяет сделать вывод о том, что аналогичная методика может с успехом применяться и для выделения радиотулия из облученного протонами эрбия.

Настоящая работа посвящена выбору оптимальных условий получения препаратов радиотулия высокой удельной активности, с обогащением по отношению к эрбию порядка 10^6 и минимальными потерями при разделении.

Мишень для бомбардировки протонами изготавливали из пластинок металлического эрбия массой 1,5-1,6 г с размерами $0,6 \times 10 \times 30$ мм³. Содержание тулия в эрбии было не более

$2 \cdot 10^{-4}$ %. Облучение проводили внутри вакуумной камеры синхротрона ОИЯИ протонами с энергией около 100 МэВ. Толщина мишени по направлению пучка составляла ≈ 10 г/см².

Облученный эрбий растворяли в 5 мл 6М НСl, раствор разбавляли до 50 мл 0,1М НСl и сорбировали из него лантаниды на "большой" экстракционной хроматографической колонке /2,6 см x 40 см/^{4/}. Сорбент содержал 0,6 г неразбавленной Д2ЭГФК на грамм гидрофобизированного силикагеля марки КСК-2,5. На этой колонке при элюировании растворами соляной кислоты отделялась основная часть материала мишени, а фракция, содержащая тулий и несколько миллиграммов эрбия, подвергалась повторному разделению на аналогичной "малой" колонке /0,6x17 см; размер зерен силикагеля - 50-70 мкм/.

Окончательная очистка от следов эрбия и концентрирование тулия выполнялись на хроматографической микроколонке /2x100 мм/, заполненной катионитом Дауэкс 50x8 /20-25 мкм/. Элюентом служил 0,1М раствор α -окснзобутирата аммония с рН= 4,7.

Элюенты из экстракционно-хроматографических колонок собирали отдельными фракциями по 0,15 свободного объема колонки. Содержание эрбия в каждой фракции определяли титрованием диэтилтриаминпентауксусной кислотой и индикатором Арсеназо III^{5/}. Радиоактивным индикатором поведения тулия в модельных разделениях служил ¹⁶⁷Tm, выделенный из тантала, облученного протонами 660 МэВ^{6/}.

Радионуклидная чистота, изотопный состав препарата тулия и абсолютные сечения образования ¹⁶⁷Tm и ¹⁶⁸Tm рассчитывались исходя из результатов измерения гамма-спектров радиотулия и ²⁴Na, снятых на спектрометре с полупроводниковым Ge(Li)-детектором. Спектры обрабатывались на ЭВМ "Минск-2" по программе ЭПОС-1^{7/}.

При определении абсолютных сечений образования изотопов тулия поток протонов рассчитывался по активности ²⁴Na, образовавшегося в алюминиевой фольге, обернутой вокруг эрбиевой пластинки. Сечение реакции ²⁷Al(p,3pn)²⁴Na было принято равным $1 \cdot 10^{-26}$ см² /8/.

Поскольку период полураспада ¹⁶⁸Tm практически не накладывал ограничений на продолжительность его отделения от эрбия, разделение элементов на "большой" колонке проводили

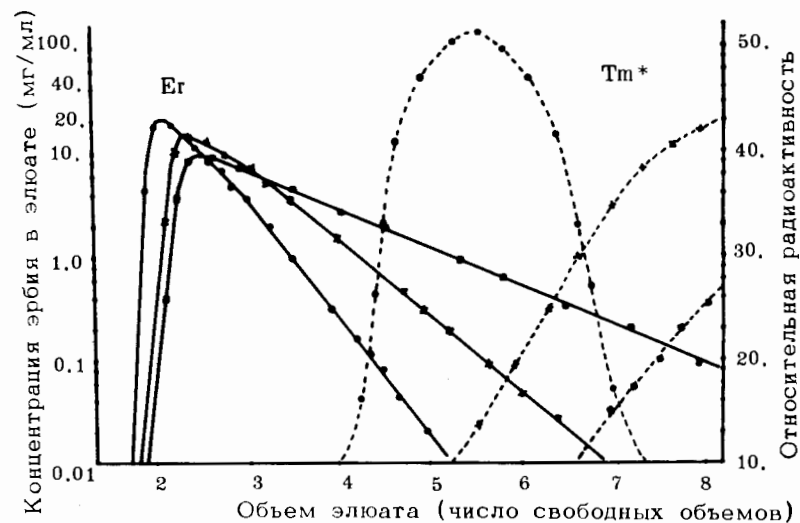


Рис. 1. Элюирование макроколичества эрбия и микроколичества тулия растворами НСl. Рабочая температура $60 \pm 2^\circ \text{C}$, количество эрбия 1,5 г, скорость элюирования 1,25 см/мин /● — 4,0М, × — 3,5 М, ■ — 3,0 М/.

при оптимально низких скоростях элюирования $v \approx 1,2$ см/мин/, что позволило получить более четкие границы зон вымывания макро- и микроколичеств двух соседних лантанидов даже при загрузке емкости "большой" колонки 30% /из расчета образования соединения $\text{Er}/\text{H} / \text{Д2ЭГФК} /_{2/3} /$.

Результаты разделения 1,5 г эрбия и микроколичества тулия, при их элюировании растворами НСl различных концентраций, показаны на рис. 1. В оптимальном случае, при использовании 4М НСl, процесс разделения продолжается около двух часов. В 400 мл элюента, собранного после четвертого свободного объема, содержится не менее 95% тулия и 3-5 мг эрбия. Отделение миллиграммовых количеств эрбия от тулия на "маленькой" колонке осуществлялось при элюировании элементов 4,8М НСl со скоростью ≈ 2 см/мин. Благодаря малой загрузке сорбента эрбием /не более 4%/ во фракцию, содержащую более 95% нанесенного на колонку тулия, попадало 50 ± 10 мкг эрбия /рис. 2/. Такие количества не вызывают затруднений на заклю-

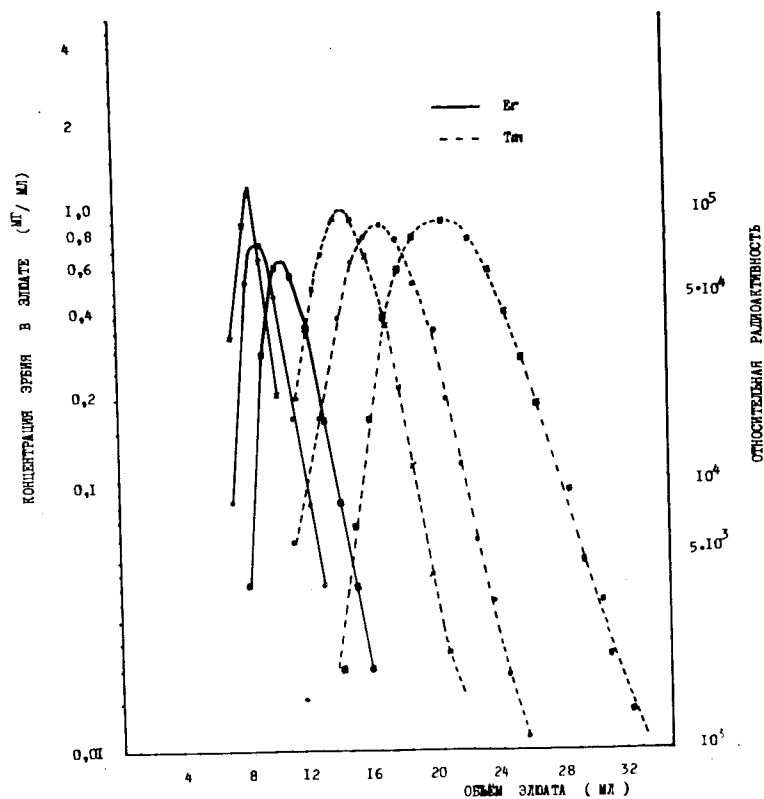


Рис. 2. Элюирование эрбия и микроколичеств тантала раствором HCl . Рабочая температура $60 \pm 2^\circ\text{C}$, количество эрбия 4 мг, скорость элюирования 2 см/мин / \times - 4,8 М, \bullet - 4,5 М, \blacksquare - 4,0 М/.

чительном этапе получения препарата радиотулия - хроматографическом концентрировании и очистке от следов эрбия на катионообменной микроколонке /рис. 3/.

По данным модельных опытов в результате такой трехстадийной очистки из мишени выделялось 85-90% тулия, практически свободного от загрязнений эрбием. Объем содержащего тулий раствора составлял 0,1-0,12 мл. Анализ гамма-спектра препарата радиотулия показал отсутствие линий, которые можно было бы приписать другим элементам.

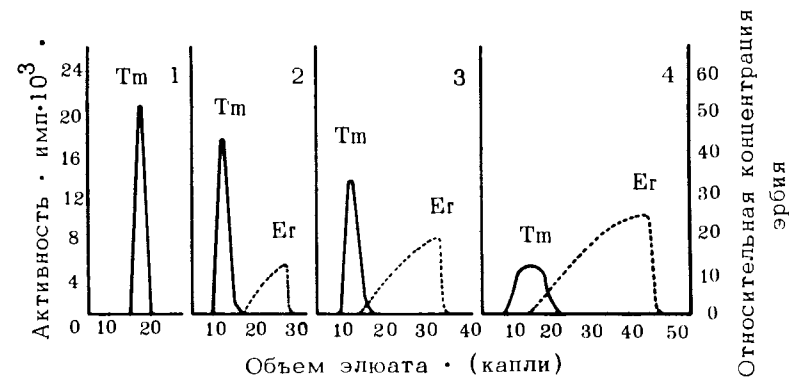


Рис. 3. Формы кривых элюирования микроколичеств тулия и эрбия при разделении на микроколонке. Смола Дауэкс 50Х8, рабочая температура 25°C . Скорость элюирования 45 с/кап. Размер частиц смолы 25 ± 30 мкм / 2×100 мм/, /1- без Er, 2-100 мкг Er, 3-250 мкг Er, 4-500 мкг Er/.

Сечения образования ^{167}Tm и ^{168}Tm в реакциях расщепления эрбия протонами ≈ 100 МэВ, полученные по результатам трех определений, равны $8,8 \pm 0,9$ мб и $4,0 \pm 0,4$ мб, соответственно. Следовательно, в данном случае выход ^{168}Tm относительно ^{167}Tm повысился минимум в 50 раз по сравнению с танталовой мишенью, облученной протонами 660 МэВ. После масс-сепарации радиотулия, выделенного из эрбия через две недели после облучения, были получены препараты ^{168}Tm , практически не содержавшие других изотопов элемента, и успешно использовались в ядерно-спектрометрических исследованиях свойств этого нуклида.

ВЫВОДЫ

Двухстадийная экстракционно-хроматографическая методика отделения микроколичеств тулия от макроколичеств эрбия с последующим концентрированием тулия на микрохроматографической катионообменной колонке, позволяет выделить

85-90% тулия из эрбиевой мишени весом 1,5-1,6 г. Препарат радиотулия практически свободен от загрязнений другими лантанидами.

Сечения образования ^{167}Tm и ^{168}Tm в реакциях $\text{Er}(p, xn)\text{Tm}$ с протонами 100 МэВ составляет $8,8 \pm 0,9$ и $4,0 \pm 0,4$ мб, соответственно.

ЛИТЕРАТУРА

1. Громов К.Я. и др. ЭЧАЯ, 1975, т.6, вып. 4.
2. Bruninx E. High Energy Nuclear Reaction Cross Section. CERN, 1962, 69-2.
3. Do Kim Tiung et al. J. of Radioanal. Chem., 1976, 30, p.353.
4. Херрманн Э. и др. Радиохимия, 1964, 6, с.756.
5. Herrmann E. Dissertation Technische Universitat Dresden. Dresden, 1966.
6. Молнар Ф., Халкин В.А., Херрманн Е. ЭЧАЯ, 1973, 3, с.1077.
7. Адилбиш М. и др. ОИЯИ, 6-10892, Дубна, 1977.
8. Денисов Ф.П., Мехедов В.Н. Ядерные реакции при высоких энергиях. Атомиздат, М., 1972, с.171.

Рукопись поступила в издательский отдел
9 февраля 1979 года.