

7120
С - 1

12-2006-2

На правах рукописи
УДК 539.172.3

САБЕЛЬНИКОВ
Алексей Валентинович

ПОЛУЧЕНИЕ ПРЕПАРАТОВ ^{99m}Tc , ^{225}Ac И ^{237}U
С ВЫСОКОЙ РАДИОНУКЛИДНОЙ ЧИСТОТОЙ
В ФОТОЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЯХ

Специальность: 05.17.02 — технология редких, рассеянных
и радиоактивных элементов

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата химических наук

С413

Москва 2006

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г.Н. Флерова
Объединенного института ядерных исследований, Дубна.

Научный руководитель: профессор, д.ф.м.н. Дмитриев С.Н.

Официальные оппоненты: профессор, д.х.н. Норсеев Ю.В.
профессор, д.х.н. Очкин А.В.

Ведущая организация:

Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина, РАН.

Защита состоится « » 2006 г. на заседании
диссертационного совета Д 212.204.09 при Российском химико-
технологическом университете имени Д.И. Менделеева по адресу:
г. Москва, ул. Героев Панфиловцев, д. 20, корп. 1 в часов в
конференц-зале ИФХ факультета.

С диссертацией можно ознакомиться в Научно-информационном
центре РХТУ имени Д.И. Менделеева.

Автореферат диссертации разослан « » января 2006 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета Д 212.204.09:

к.х.н. Чибрикина Е.И.

Актуальность темы. В настоящее время потребление радиоактивных изотопов в мире продолжает увеличиваться. Этому способствует все более возрастающий интерес к таким отраслям науки, как ядерная медицина, радиофармацевтика, радиэкология. Постановка новых задач в экологических исследованиях, освоение синтеза новых фармакологических препаратов, способных доставлять радионуклиды к различным органам человеческого тела, позволяет не только расширить применение уже известных в этих областях науки радиоизотопов, но и открывает возможности для использования радионуклидов, ранее не получивших широкого применения в медицине и экологии.

Изотоп ^{99m}Tc очень широко используется в ядерной медицине для диагностики различных заболеваний человека. Это объясняется практически идеальным сочетанием его ядерно-физических свойств с возможностью ежедневного получения радионуклида из генератора непосредственно в клинике и синтеза большого количества простых и комплексных соединений, которые могут быть использованы в самых различных клинических ситуациях. В настоящее время мировое потребление этого радионуклида превышает 200000 Ки в год и продолжает увеличиваться. Поэтому совершенствование технологии ^{99m}Tc остается крайне актуальной задачей.

Изотоп актиния с массовым числом 225 в настоящее время используется в качестве материнского нуклида для получения ^{213}Bi , который находит применение в ядерной медицине при радиотерапии раковых заболеваний. Однако ^{225}Ac может быть и сам приме­не­н для этих же целей. Это несомненно приведет к увеличению потребности в ^{225}Ac в ближайшем будущем.

^{237}U представляет интерес для применения в радиэкологических исследованиях при изучении поведения урана в биосфере, а также в лабораторных экспериментах по моделированию его поведения в различных природных и техногенных системах.

Основными способами получения ^{99m}Tc и ^{225}Ac в настоящее время являются: для ^{99m}Tc – облучение обогащенного ^{98}Mo быстрыми, или тепловыми нейтронами в реакции $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)$, или при делении ^{235}U из возбужденного тепловыми нейтронами состояния (облучения проводят в высокопоточных ядерных реакторах), для ^{225}Ac – облучение ^{226}Ra протонами в реакции $^{226}\text{Ra}(p, 2n)$ (облучение проводят на ускорителях заряженных частиц при энергии протонов 16 МэВ). Эти методы характеризуются высокими сечениями реакций и достаточно большими выходами целевых радионуклидов. Однако их применение не всегда может быть удобным в силу сложностей, связанных с очисткой конечного продукта, утилизацией высокоактивных отходов, необходимостью использования дорогостоящих физических установок.

Изотоп ^{237}U до настоящего времени не нашел широкого применения из-за отсутствия удобных методов его получения.

Вышеуказанное предопределяет актуальность развития альтернативных путей производства данных радионуклидов, которые могли бы служить дополнением к уже существующим методам, а в отдельных случаях и заменять

Объединенный институт
ядерных исследований

их. Один из таких методов – использование фотоядерных реакций. Сечения этих реакций ниже, чем сечения реакций с участием протонов и нейтронов. Однако при взаимодействии фотонов с ядрами мишени реализуется, как правило, лишь (γ, n) канал реакции, т.е. наблюдается образование только целевого нуклида. Это значительно повышает радионуклидную чистоту продукта, упрощает процедуру его выделения, очистки и снижает дозовые нагрузки. К тому же, ускорители электронов, использующиеся в качестве установок для получения пучков фотонов, более компактные и менее энергоемкие по сравнению с ядерными реакторами и ускорителями частиц, что открывает возможности организации небольших производств конкретных целевых радионуклидов в рамках отдельного региона.

На основании вышеизложенного проведение исследований по получению препаратов ^{99m}Tc , ^{225}Ac и ^{237}U с высокой радионуклидной чистотой в фотоядерных реакциях представляется актуальным.

Цель работы. Разработка технологии получения препаратов ^{99m}Tc , ^{225}Ac , ^{237}U с высокой радионуклидной чистотой в фотоядерных реакциях для применения в радиобиологических и радиозоологических исследованиях.

Научная новизна. Впервые экспериментально показано, что фотоядерные реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99m}\text{Tc}$, $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)^{225}\text{Ra} \rightarrow ^{225}\text{Ac}$, $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ позволяют получать целевые радионуклиды с высокой (на уровне $10^{-5} - 10^{-6}$ Бк/Бк) радионуклидной чистотой конечных препаратов.

Разработаны физико-химические основы технологии ^{99m}Tc в фотоядерных реакциях, включающие облучение исходных мишеней фотонами с использованием микротрона МТ-25, радиохимическое выделение и концентрирование конечных продуктов.

Разработана методика получения ^{225}Ac , включающая изготовление исходных мишеней, облучение их фотонами с использованием микротрона МТ-25 с последующим радиохимическим выделением и концентрированием ^{225}Ac .

Впервые разработан способ получения препаратов ^{237}U с высокой удельной активностью с использованием метода сбора ядер отдачи. Коэффициент обогащения ^{237}U при этом составляет $10^2 - 10^3$. Способ защищен патентом РФ.

Практическая ценность. Полученные результаты дают важную информацию о возможностях применения реакций (γ, n) и (γ, f) для получения радиоизотопов на микротроне и линейном ускорителе электронов. Разработанные методики дают возможность получать изотопы с характеристиками, позволяющими использовать их в медицинских, а также в радиозоологических и радиохимических исследованиях (электрофорез Мо-Тс, анализ Th, U, Np и Pu в почвах и природных водах). Препараты ^{237}U применяются в электромиграционных исследованиях и в физических исследованиях возмущенных угловых корреляций (ВУК).

Дальнейшее развитие работ по получению ^{225}Ac и ^{99m}Tc в фотоядерных реакциях на пучках электронов компактных ускорителей позволит только на базе микротрона МТ-25 ЛЯР ОИЯИ получать препараты ^{225}Ac активностью до 10^9 Бк, а препараты ^{99}Mo – до 10^{11} Бк. Внедрение методов получения ^{237}U , ^{99}Mo , ^{225}Ac в практику работ электронных ускорителей (линейных и микротронов) с учетом их

относительно большей доступности, простоты управления и меньших энергозатрат по сравнению с дорогостоящими ускорителями заряженных частиц существенно снизит себестоимость производства данных радионуклидов и расширит область их применения.

Апробация работы. Материалы диссертационной работы докладывались и обсуждались на семинарах Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ, VII Международном рабочем совещании по мишеням и мишенной химии (Гейдельберг, Германия, 1997), VI Международной школе-семинаре по физике тяжелых ионов (Дубна, 1997), Рабочем совещании по мониторингу природных и искусственных радионуклидов и тяжелых металлов в окружающей среде (Дубна, 1999), V Международной конференции по ядерной и радиохимии (Понтрежина, Швейцария, 2000), III Российской конференции по радиохимии (Санкт-Петербург, 2000), XIV Международной радиохимической конференции (Марианские Лазне, Чехия, 2002), III Российско-японском семинаре по технецию (Дубна, 2002), Международном научном семинаре по электронным пучкам низких и средних энергий (Дубна, 2003), Рабочем совещании по перспективам применения альфа-распадчиков в медицине (Дубна, 2003), I Координационном совещании по перспективам исследований в области наук о жизни человека в мировых ядерных центрах (Золотые пески, Болгария, 2003), IV Российской конференции по радиохимии «Радиохимия – 2003» (Озерск, 2003), V Международной конференции по современным проблемам в ядерной физике (Самарканд, Узбекистан, 2003), II Международном симпозиуме по разделению и концентрированию в аналитической химии и радиохимии (Краснодар, 2005).

Публикации. По теме диссертации опубликовано 23 работы.

Объем работы. Работа состоит из введения, 2 глав, выводов и содержит 83 страницы, 11 рисунков, 10 таблиц и список ссылок из 113 наименований.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы исследования и сформулированы основные цели работы.

Первая глава (литературный обзор) содержит анализ литературных данных о ядерно-физических свойствах ^{99m}Tc , ^{225}Ac , ^{237}U , областях их применения, основных методах получения и выделения. Рассмотрены особенности применения эффекта Сцилларда – Чалмерса в реакциях (γ, n). Отмечено, что фотоядерные реакции при разработке соответствующих методик разделения конечных продуктов являются перспективными для получения изотопов с высокой радионуклидной чистотой.

Вторая глава (экспериментальная часть) содержит описание параметров используемого в работе компактного ускорителя электронов – МТ-25 микротрона, спектрометрического оборудования, мишенного узла, результаты экспериментов по определению оптимальных геометрических размеров мишеней, экспериментальные данные по выходам ^{99m}Tc , ^{225}Ac , ^{237}U в реакциях (γ, n) с использованием микротрона МТ - 25, а также методики выделения данных изотопов из облученных мишеней.

Параметры используемого в работе компактного ускорителя электронов – МТ-25 микротрона, спектрометрического оборудования, мишенного узла

Микротрон – многоцелевой ускоритель электронов, позволяющий получать первичные и вторичные пучки частиц для различных исследований. Первичным пучком является пучок электронов. К вторичным пучкам относятся тормозное излучение (гамма-пучки) и нейтроны, получаемые в результате (γ, n) - реакции на тяжелых металлах, а также смешанное γ -n поле.

Основные параметры микротрона:

Максимальная энергия ускоренных электронов, МэВ	25
Диапазон изменения энергии, МэВ	5-25
Средний ток ускоренных электронов, мкА	25
Поток фотонов, c^{-1}	10^{14}
Плотность потока тепловых нейтронов, $cm^{-2} \cdot c^{-1}$	10^9
Плотность потока быстрых нейтронов, $cm^{-2} \cdot c^{-1}$	10^8
Потребляемая мощность, кВт	20

В работе использовалось следующее спектрометрическое оборудование:

- детектор из сверхчистого Ge с разрешением 1,5 кэВ на линии 1,33 МэВ (^{60}Co) для измерений гамма-активности;
- Si(Au)-детектор площадью 0,6 cm^2 и разрешением 16 кэВ для измерений альфа-активности;
- Si(Li) детектор с разрешением ~200 эВ на линии $FeK_{\alpha 1}$ ($E_{\gamma} = 6,4$ кэВ) для рентгено-флюоресцентного анализа с возбуждением рентгеновского излучения радионуклидным источником ^{109}Cd .

Используемый в работе мишеный блок представляет собой открытый с одной стороны алюминиевый держатель, в центр которого помещается контейнер с мишенью. После этого открытая сторона держателя плотно закрывается алюминиевой фольгой толщиной 50 мкм и держатель жестко крепится непосредственно за вольфрамовым конвертором электронов. Данная конструкция обеспечивает соосность мишени и пучка фотонов, что позволяет максимально использовать его интенсивность. (Рис. 1).

Определение оптимальных геометрических размеров мишеней

Мишень, представляющую собой набор из 34 пластины из природного молибдена, облучали потоком фотонов МТ-25. Толщина каждой пластины составляла 300 мкм, высота и ширина – по 24 мм. Расстояние от конвертора электронов до мишени составляло 5 мм. Максимальная энергия фотонов составляла 24 МэВ, ток электронов – 15 мкА. После окончания облучения каждую пластину измеряли на гамма-спектрометре. Для пластины под номерами: 1, 5, 9, 18, 26 и 34 проводили измерение распределения активности по площади каждой

пластины. По экспериментальным данным были построены кривые распределения интенсивности потока фотонов с энергиями выше пороговой энергии для реакции $^{100}Mo(\gamma, n)$ в поперечной и продольной плоскостях пучка (рис. 2).

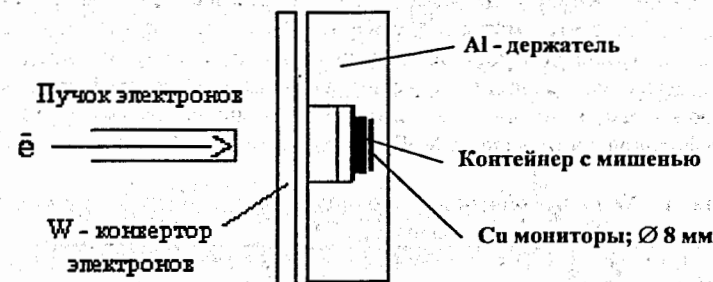


Рис. 1. Схема облучения тонких мишеней на МТ-25.

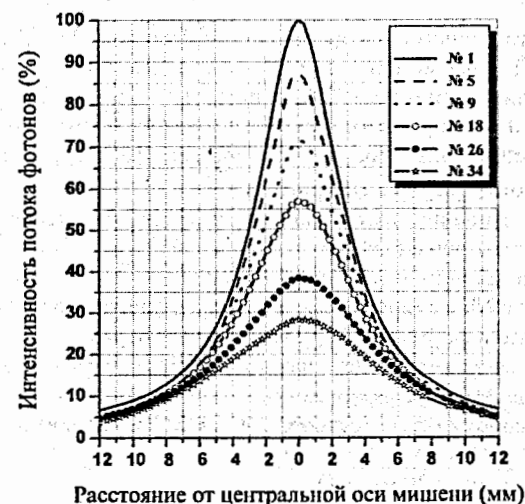


Рис. 2. Распределение интенсивности пучка фотонов в поперечной и продольной плоскостях.

На основании полученных результатов был сделан вывод о том, что диаметр мишени, равный 8 - 10 мм, наиболее полно отвечает условиям задач по наработке больших удельных активностей на микротроне МТ-25 ЛЯР ОИЯИ. Что касается толщины мишени, то она, как правило, определяется заданным количеством мишенного материала.

Получение ^{99m}Tc в реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{99m}\text{Tc}$ с использованием мишени из $^{100}\text{MoO}_3$ и металлического ^{nat}Mo

Получение ^{99m}Tc в реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \xrightarrow{\beta^-} ^{99m}\text{Tc}$ с использованием мишени из карбонила молибдена

Для определения выхода ^{99}Mo облучали мишени из ^{nat}Mo (9,6% ^{100}Mo) в виде фольги и $^{100}\text{MoO}_3$ (содержание ^{100}Mo - 99,9%) в виде порошка. Масса фольги составляла 125,5 мг, масса $^{100}\text{MoO}_3$ - 15,6 мг. В случае фольги мишень располагали непосредственно в мишенном блоке, а в случае оксида молибдена мишень помещали в цилиндрический алюминиевый контейнер с внутренним диаметром 8 мм, который затем закрепляли в мишенном блоке. Максимальная энергия фотонов составляла 24 МэВ, ток электронов - 15 мкА (Таблица 1).

Мишени, содержащие 60 и 37 мг кристаллического порошка $^{nat}\text{Mo}(\text{CO})_6$, облучали потоком фотонов микротрона с максимальной энергией 24 МэВ. Время облучения составило 30 минут. Затем облученный порошок карбонила молибдена помещали в перегонную установку (рис. 3) и проводили отгонку карбонила молибдена из мишенного контейнера в приемный контейнер. Схема разделения Mo и Tc дана на рис. 4.

Таблица 1. Условия облучения молибденовых мишеней гамма-квантами на микротроне МТ-25 и результаты выхода ^{99}Mo

№ п/п	Мишень	Ток, мкА	Время облучения, ч	Содержание ^{100}Mo , мг	Выход ^{99}Mo на время окончания облучения (кБк/мкА·ч·мг ^{100}Mo)
1	^{nat}Mo -фольга	15	1,5	12,05	3,2
2	$^{100}\text{MoO}_3$	15	2,0	10,52	3,1

Из результатов опытов следует, что облучение 10 г ^{100}Mo (обогащение 99,9%) в течение 100 часов при токе 25 мкА и энергии электронов 25 МэВ приведет к накоплению активности ^{99}Mo порядка 10^{11} Бк.

Облучение 10 г природного молибдена (9,6% ^{100}Mo) в тех же условиях приведет к накоплению активности ^{99}Mo порядка 10^{10} Бк, что соответствует характеристикам промышленных генераторов ^{99m}Tc .

Облученные мишени охлаждали в течение 20 часов и проводили выделение ^{99m}Tc по следующей схеме:

1. Растворение мишени в растворе 2 М NaOH.
2. Соосаждение Nb с гидроксидом железа. Центрифугирование.
3. Перевод ^{99}Mo в форму фосфорномолибдата натрия.
4. Сорбция фосфорномолибдата натрия на хроматографическом Al_2O_3 .
5. Перенесение Al_2O_3 с сорбированным ^{99}Mo на колонку.
6. Промывка колонки 2 мл раствора 0,03 М HCl с бромом для стабилизации Mo (VI).
7. Промывка колонки 20 мл H_2O .
8. Элюирование ^{99m}Tc 0,85%-ным раствором NaCl.

Выход ^{99m}Tc в данной методике составляет 80%, содержание радиоактивных примесей не превышает 10^{-5} Бк/Бк.

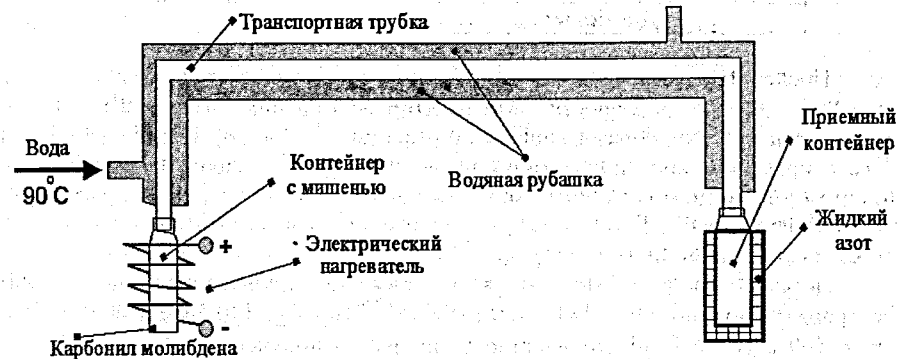


Рис. 3. Схема перегонной установки.

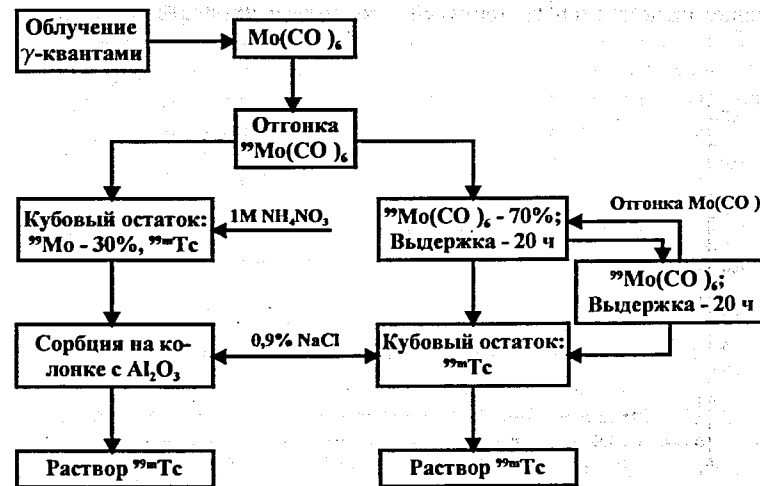


Рис. 4. Схема выделения ^{99m}Tc из облученной мишени.

Температуру в процессе отгонки поддерживали в интервале 90-100°C. Приемный контейнер охлаждали жидким азотом. Время отгонки составило 1 час. Результаты опытов с мишенями из карбонила молибдена даны в таблице 2.

Таблица 2. Результаты опытов с $\text{Mo}(\text{CO})_6$

№ п/п	Образец, мг	Опыт	Содержание Mo, %	Содержание Tc, %
1	60	Кубовый остаток	34	70
		Дистиллят	66	30
2	37	Кубовый остаток	30	64
		Дистиллят	70	36

После отгонки карбонила молибдена в кубовом остатке остаются $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (~67±3%), ~32±2 % активности ^{99}Mo (фактор обогащения ^{99}Mo – 10^4), а также радионуклиды $^{95-97}\text{Nb}$, образовавшиеся по реакции $^{96-98}\text{Mo}(\gamma, p)$. После накопления $^{99\text{m}}\text{Tc}$ в приемном контейнере снова проводили отгонку карбонила молибдена. При этом в приемном контейнере остается только $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (70%), который смывали 0,9 % раствором NaCl. Таким образом, данная система может быть использована в качестве сублимационного генератора $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Детектирование ^{99}Mo во всех образцах производили на гамма-спектрометре по линии $E_\gamma = 181,1$ кэВ (6,06%), $^{99\text{m}}\text{Tc}$ – $E_\gamma = 140,5$ кэВ (88,9%), ^{96}Nb – $E_\gamma = 569$ кэВ (55,7 %). Количество молибдена в полученных препаратах ^{99}Tc определяли рентгенофлуоресцентным методом. Содержание молибдена в препаратах не превышало 10^{-6} г. Результаты измерения рентгеновских и гамма-спектров препаратов $^{99\text{m}}\text{Tc}$, полученных в опытах, представлены на рис. 5, 6. Содержание радиоактивных примесей в конечном продукте не превышало 10^{-5} Бк/Бк.

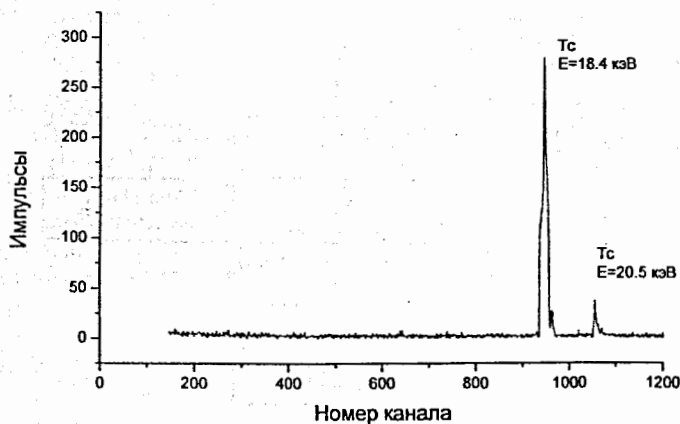


Рис. 5. Рентгеновский спектр препарата $^{99\text{m}}\text{Tc}$

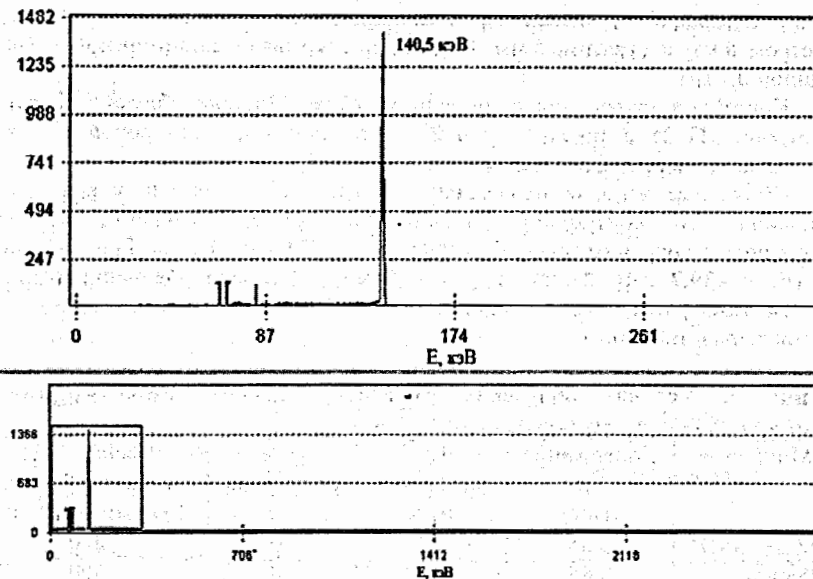
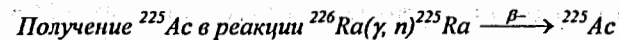


Рис. 6. Гамма-спектр препарата $^{99\text{m}}\text{Tc}$

Применение мишеней из обогащенного ^{100}Mo более предпочтительно, т.к. при облучении ^{100}Mo фотонами с максимальной энергией до 24 МэВ не происходит наработка долгоживущих примесей ($^{90,91,91\text{m},93\text{m}}\text{Mo}$ и $^{97,96,95,91\text{m}}\text{Nb}$), что имеет место при облучении мишеней из ^{nat}Mo .

При взаимодействии электронов с материалом тормозной мишени, фотонов с облучаемым препаратом и конструкционными материалами мишенного блока образуются нейтроны. Для представленных экспериментальных условий поток тепловых нейтронов равен 10^5 н·см⁻²·с⁻¹ оценен нами с использованием реакции $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$. Нуклиды, образующиеся в результате реакции $^{100}\text{Mo}(n, \gamma)^{101}\text{Mo}$ ($T_{1/2}=14,6$ мин) $\xrightarrow{\beta^-}$ ^{101}Tc ($T_{1/2}=14,2$ мин) $\xrightarrow{\beta^-}$ ^{101}Ru (стаб.) через несколько часов после активации полностью распадаются в стабильный ^{101}Ru . Таким образом, радиохимическая чистота препарата $^{99\text{m}}\text{Tc}$ определяется только изотопной чистотой ^{100}Mo .



Для определения выхода ^{225}Ac были изготовлены две тонкие мишени, содержащие по 0,65 мкг ^{226}Ra каждая. Одна мишень представляла собой смесь порошков: сульфатов бария и радия, а другая – нитрат радия на алюминиевой подложке. Химическая форма мишеней определялась технологией извлечения и концентрирования радия из его источников, имеющих в наличии. Каждую

мишень помещали в отдельный цилиндрический алюминиевый контейнер диаметром 8 мм и высотой 5 мм. Контейнер закрывали алюминиевой крышкой толщиной 0,1 мм.

Контейнер закрепляли в мишенном блоке. Мишени облучали фотонами микротрона МТ-25 в течение 30 и 20 часов при токе электронов 15 мкА и максимальной энергии фотонов 24 МэВ.

Облученные мишени охлаждали в течение 18 суток для максимального накопления ^{225}Ac , контролируя на гамма-спектрометре изменение активности актиния по его дочерним продуктам ^{221}Fr ($E_\gamma = 217,6$ кэВ, 12,5%, $T_{1/2} = 4,8$ мин) и ^{213}Po ($E_\gamma = 439,7$ кэВ, 27,3%, $T_{1/2} = 45,6$ мин). Условия облучения радиевых мишеней гамма-квантами на микротроне МТ-25 и результаты выхода ^{225}Ac представлены в таблице 3.

Таблица 3. Условия облучения радиевых мишеней гамма-квантами на микротроне МТ-25 и результаты выхода ^{225}Ac

Мишень	Содержание ^{226}Ra (мкг)	Ток электронов (мкА)	Время облучения (ч)	Выход ^{225}Ac на $t_{\text{охл}} = 18$ суток (Бк/ч·мкА·мг ^{226}Ra)
$\text{RaSO}_4 + \text{BaSO}_4$	0,65	15	30	550
$\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$	0,65	15	20	550

Через 18 суток после окончания облучения мишень из $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ растворяли в 9 М НСl, раствор упаривали до влажных солей, которые растворяли в 0,1 М НСl. Далее разделение продуктов реакции проводили методом ионообменной хроматографии по следующей методике:

1. Исходный раствор 0,1 М НСl объемом 0,5 мл переносили на катионообменную колонку 0,2 x 4 см, содержащую катионит Dowex-50 (200-400 меш).
2. Колонку промывали раствором 9 М НСlO₄ объемом 4 мл (вымываются Ra, Po, Pb, Bi)
3. ^{225}Ac элюировали раствором 5 М ННО₃ объемом 1 мл.

Спектрометрические измерения различных фракций и конечного препарата проводили с использованием гамма- и альфа-спектрометров. Источники для альфа-спектрометрии были изготовлены путем нанесения аликвоты, отобранной из фракции актиния, на подложку из нержавеющей стали с последующим испарением раствора. Детектирование ^{225}Ac производили по линиям с $E_\alpha = 5,581$ МэВ (1,2 %), 5,609 МэВ (1,2 %), 5,638 МэВ (4,4 %), 5,683 МэВ (1,3 %), 5,724 МэВ (3,2 %), 5,732 МэВ (10,2 %), 5,792 МэВ (8,7 %), 5,794 МэВ (18,2 %), 5,830 МэВ (50,9 %).

Результаты α -измерений препарата ^{225}Ac представлены на рис. 7. В представленном спектре фон от альфа-частиц с энергией 4,785 МэВ (94,4 %), 4,602 МэВ (5,55 %), относящихся к ^{226}Ra , соответствовал его содержанию в препарате на уровне $6 \cdot 10^{-5}$ Бк.

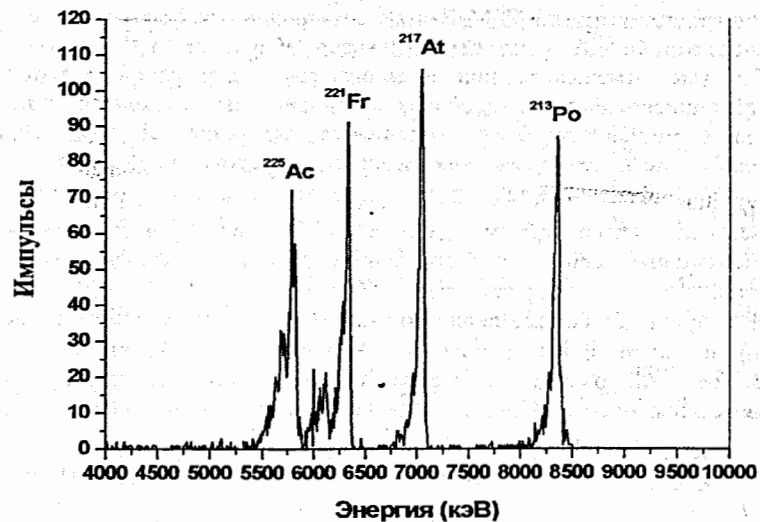


Рис. 7. Альфа спектр препарата ^{225}Ac .

С целью определения разницы в величинах радиационных выходов ^{225}Ra при облучении тонкой и толстой мишеней из ^{226}Ra были поставлены модельные опыты с использованием в качестве мишени хлорида свинца. Тонкая мишень диаметром 8 мм содержала 9,6 мг порошка PbCl_2 (7,2 мг по Pb). Толстая мишень представляла собой стальной цилиндр с внутренним диаметром 8 мм, в который помещали порошок PbCl_2 массой 2,69 г (2,008 г по Pb). Обе мишени облучали в течение 10 минут при токе электронов 15 мкА и максимальной энергии фотонов 24 МэВ. Измерения активности мишеней проводили спустя 5 суток после окончания облучения. В случае толстой мишени облученный порошок PbCl_2 извлекали из трубки, тщательно перемешивали и отбирали пробу массой 13 мг (9,7 мг по Pb), которую измеряли в тех же геометрических условиях, что и тонкую мишень. Результаты экспериментов с учетом выбранных геометрических параметров показали уменьшение удельной активности для толстой мишени не более, чем на 20% по сравнению с таковой для тонкой мишени (Таблица 4).

Таблица 4. Облучение тонкой и толстой мишеней из PbCl_2 .

Мишень	Содержание ^{nat}Pb (мг)	Ток электронов (мкА)	Время облучения (мин)	Выход ^{203}Pb на время окончания облучения (Бк/ч·мкА·мг ^{nat}Pb)
PbCl_2	7,2	15	10	34
PbCl_2	2008	15	10	28

Таким образом, на микротроне МТ-25 при токе электронов 25 мкА и времени облучения 100 часов с 10 мг (1 г) ^{226}Ra можно получить до 10^7 Бк (10^9 Бк) ^{225}Ac . При использовании линейных ускорителей электронов, где энергии гамма-

квантов могут достигать до 50 МэВ, токи электронов - 500 мкА и более, можно получать более 1 Ки ^{225}Ac менее чем за 100 часов облучения 1 г ^{226}Ra .

Как уже отмечалось, при взаимодействии электронов с материалом тормозной мишени, фотонов с облучаемым препаратом и конструкционными материалами мишенного блока образуются нейтроны. Поэтому величина отношения $^{227}\text{Ac}/^{225}\text{Ac}$ будет определяться наработкой ^{227}Ac в реакции $^{226}\text{Ra}(n, \gamma)^{227}\text{Ra} \xrightarrow{\beta^-} ^{227}\text{Ac}$. Сечение захвата тепловых нейтронов для ^{226}Ra составляет по литературным данным 12,8 барн. Следовательно, для экспериментальных условий, представленных в таблице 3, величина отношения активностей $^{227}\text{Ac}/^{225}\text{Ac}$ не превысит $1,8 \cdot 10^{-9}$ Бк/Бк.

Из результатов опытов видно, что чистота ^{225}Ac , получаемого по реакции $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ зависит от чистоты исходного ^{226}Ra и от интегрального потока фотонов.

Выход ^{225}Ac повышается 1,5 раза, если производить не одну, а несколько последовательных операций по выделению его из облученной мишени.

Получение ^{237}U в реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ с использованием метода сбора ядер отдачи

Успешное применение этого метода возможно в том случае, когда облучаемый элемент обладает способностью существовать, по крайней мере, в двух достаточно устойчивых валентных состояниях, а химические соединения, в которых стабилизируется радиоактивный изотоп, могут быть сравнительно легко отделены от исходного соединения мишени. Кроме того, используя большие пробеги ядер отдачи, возникающие при реакции (γ, n) , можно проводить обогащение радиоактивных изотопов с помощью мелкодисперсных систем, например систем ж:тв (жидкость : твердое) и тв:тв. При этом одна фаза действует как донор, а другая - как акцептор радиоактивного элемента.

Для определения выхода ^{237}U в реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ облучали фольгу из металлического природного урана с содержанием ^{238}U - 3,8 мг и порошок диоксида урана ($^{nat}\text{UO}_2$), содержащего 11 мг ^{238}U (Таблица 5). Мишени помещали в мишенный блок. Облучение проводили в течение 5 часов потоком фотонов с максимальной энергией фотонов 24 МэВ на микротроне МТ-25. Ток электронов был равен 15 мкА.

Таблица 5. Условия облучения урановых мишеней гамма-квантами на микротроне МТ-25 и результаты выхода ^{237}U .

№ п/п	Образец ^{238}U	Количество ^{238}U , (мг)	Ток, (мкА)	Время облучения, (ч)	Выход ^{237}U на конец облучения, (Бк/мкА·ч·мг ^{238}U)
1	^{nat}U - фольга	3,8	15	5	1100
2	$^{nat}\text{UO}_2$ - порошок	11	15	5	1000

Облученные мишени охлаждали в течение 24 часов и измеряли на гамма-спектрометре. По результатам измерений был оценен выход ^{237}U , который соответствовал 1 Бк/мкА·ч·мг ^{238}U .

Такие же условия облучения были при проведении экспериментов по сбору ядер отдачи ^{237}U в приведенных ниже системах тв:тв с содержанием ^{238}U в каждой мишени равным ~10 мг (Табл. 6):

1. Смесь порошков карбида урана и хлорида натрия. Мишень после облучения и охлаждения обрабатывали раствором $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$.
2. Смесь порошков карбида урана и лимоннокислого натрия. Мишень после облучения и охлаждения обрабатывали раствором $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$.
3. В серии опытов использовали смеси порошков UO_2Cl_2 или $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ с фторидами элементов 1-3 группы таблицы Менделеева. Макрокомпонент UO_2Cl_2 ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$) из облученной смеси после охлаждения отмывали раствором 0,1 М HCl , 0,1 М HNO_3 и растворами 0,1 М HCl в присутствии фторидов элементов 1-2 группы таблицы Менделеева.

Разделение осадков и растворов проводили фильтрацией через трековые мембраны с диаметром пор равным 0,1 мкм или центрифугированием.

Таблица 6. Результаты экспериментов по сбору ядер отдачи ^{237}U .

№ п/п	Мишень	Условия разделения	Удельная активность ^{237}U , (кБк/мг ^{238}U). Мишень/препарат
1	$\text{UC}+\text{NaCl}$	Раствор $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$	75/630
2	$\text{UC}+\text{Na}$ лимоннокислый.	Раствор $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$	75/750
3	$\text{UO}_2\text{Cl}_2+\text{LaF}_3+\text{CaF}_2$	0,1 М HCl , центрифугирование	75/2000
4	$\text{UO}_2\text{Cl}_2+\text{LaF}_3+\text{CaF}_2$	0,1 М $\text{HCl}+\text{CaF}_2$, центрифугирование	75/4900
5	$\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2+\text{LaF}_3+\text{CaF}_2+\text{NaF}$	0,1 М HNO_3 , фильтрация	75/49500

В веществе-сборнике концентрировались ^{237}U (сечение реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n) \cong 300$ мб) и продукты деления урана (сечение реакции $^{238}\text{U}(\gamma, f) \cong 170$ мб). Как видно из таблицы 6, в опытах с применением труднорастворимых фторидов в качестве вещества-сборника ядер отдачи достигнуты значительно большие коэффициенты обогащения ^{237}U . Это можно объяснить тем, что ядра отдачи ^{237}U стабилизируются в низких валентных состояниях и способны в отличие от U(VI) образовывать труднорастворимые соединения с ионами фтора, что способствует их более прочному удержанию в веществе-сборнике и тем самым улучшает очистку от ^{238}U , имеющего степень окисления (VI) в веществе мишени. Кроме того, повышенная растворимость в водной среде NaF , использованного в качестве добавки в опыте № 5 также способствует увеличению коэффициента очистки от ^{238}U , однако выход ^{237}U при этом тоже снижается.

Для очистки от продуктов деления при фторидном выделении радиоизотопов (пп. 3-5 Табл. 6) применяли схему разделения, представленную на рис. 8.

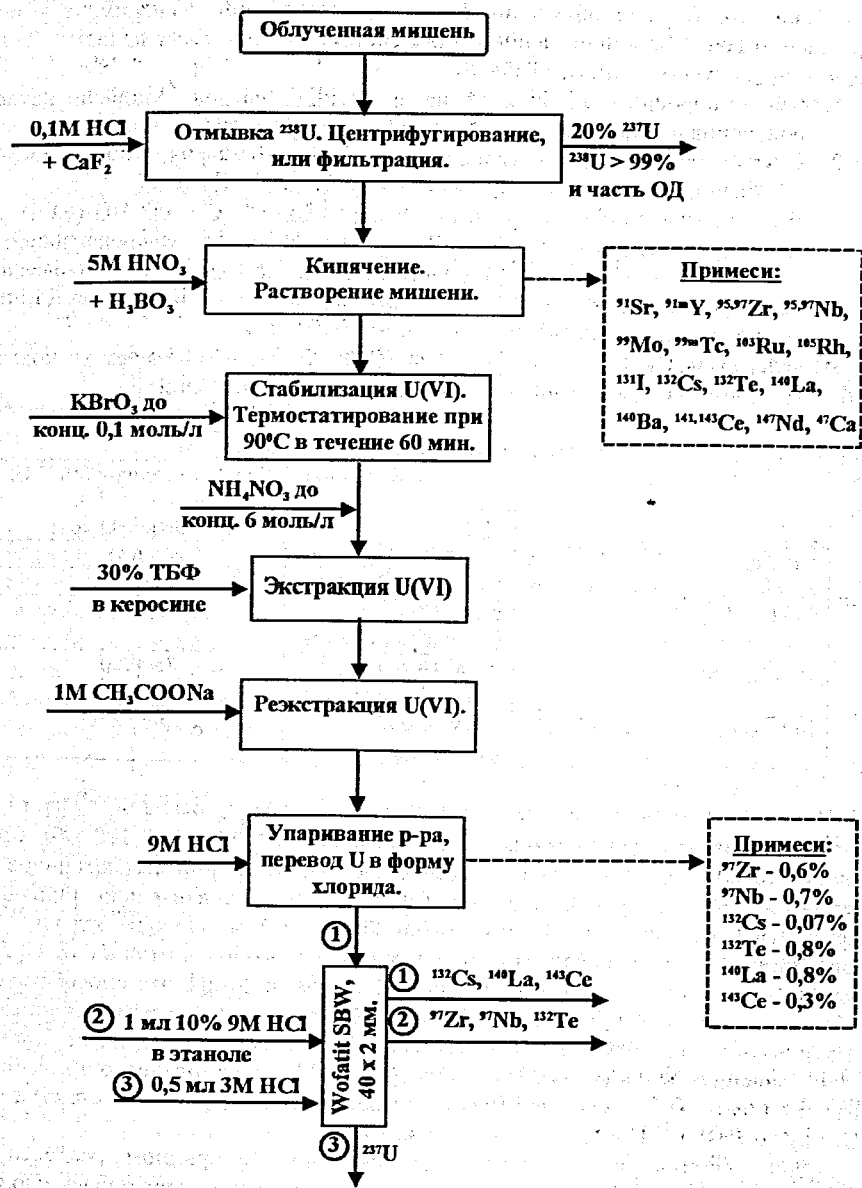


Рис. 8. Схема выделения и очистки ²³⁷U

Спектрометрические измерения различных фракций и конечного препарата производили с использованием гамма- и рентгеновского спектрометров. Детектирование ²³⁷U производили по линиям с E_γ = 0,06 МэВ (36%), 0,114 МэВ (0,06%), 0,165 МэВ (2,0%), 0,208 МэВ (23%). Содержание ²³⁸U в препаратах определяли с помощью рентгено-флюоресцентного анализа. Радионуклидную чистоту препарата оценивали как отношение активности примеси к активности основного радионуклида, выраженное в Бк/Бк, а удельную активность – как отношение активности препарата к массе содержащегося в нем ²³⁸U, нормированной на 1 мг.

Выход ²³⁷U в результате переработки мишени ²³⁸U по схеме, представленной на рис. 8 составил 70% (Табл. 6, пп. 3, 4) и 30% (Табл. 6, п. 5).

Из полученных результатов следует, что повышение удельной активности ²³⁷U достигает двух-трех порядков при использовании для облучения смесей порошков UO₂Cl₂ (UO₂(NO₃)₂) с фторидами элементов 1-3 групп таблицы Менделеева.

На рис. 9 и 10 даны спектры рентгеновского- и гамма- излучений препарата ²³⁷U. Содержание примесей радионуклидов в препарате ²³⁷U не превысило величину 10⁻⁵ Бк/Бк.

При облучении природного урана фотонами до 25 МэВ и образовавшимися нейтронами не наблюдается реакций, приводящих к образованию такого количества изотопов урана, которое бы нарушало изотопную чистоту конечного продукта – ²³⁷U и определяющим является разделение ²³⁷U и ²³⁸U.

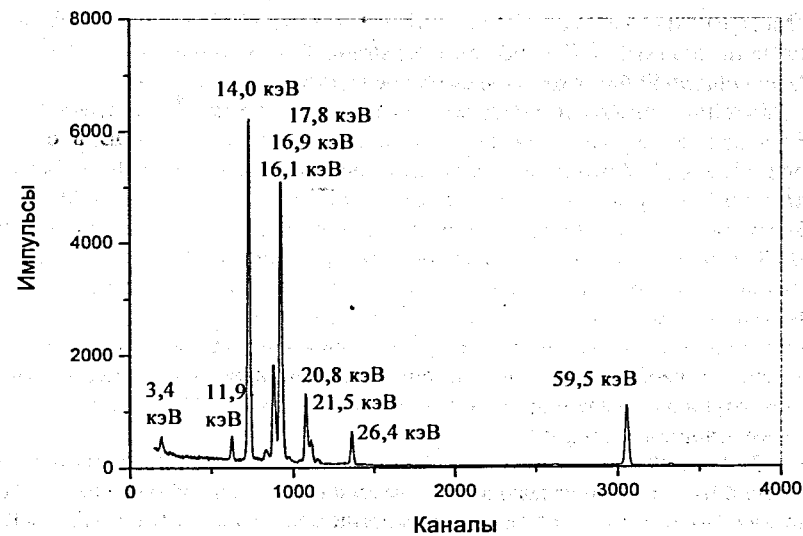


Рис. 9. Рентгеновский спектр препарата ²³⁷U

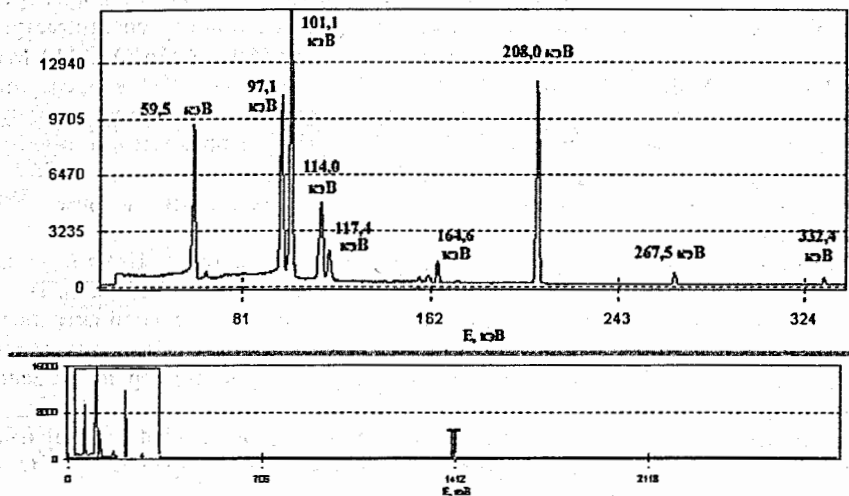


Рис. 10. Гамма-спектр препарата ^{237}U

Выводы

1. Впервые экспериментально показано, что фотоядерные реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)^{225}\text{Ra} \rightarrow ^{225}\text{Ac}$, $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ позволяют получать целевые радионуклиды с высокой (на уровне $10^{-5} - 10^{-6}$ Бк/Бк) радионуклидной чистотой конечных препаратов.
2. Разработаны физико-химические основы технологии $^{99\text{m}}\text{Tc}$, включающей облучение исходных мишеней из металлического молибдена и оксида молибдена (VI) фотонами с максимальной энергией 24 МэВ в близких к оптимальным условиям, обеспечивающих выход (ЕОВ) $^{99}\text{Mo} = 3,2$ кБк/мкА·ч·мг ^{100}Mo (при времени облучения до 100 часов), с последующим радиохимическим выделением и концентрированием $^{99\text{m}}\text{Tc}$ с использованием сорбционного генератора на основе фосфорномолибдата натрия и оксида алюминия.
3. Разработана методика получения $^{99\text{m}}\text{Tc}$, включающая облучение исходных мишеней из карбонила молибдена фотонами с максимальной энергией 24 МэВ с последующим выделением и концентрированием $^{99\text{m}}\text{Tc}$ с использованием сублимационного генератора.
4. Разработана методика получения ^{225}Ac , включающая изготовление исходных мишеней из ^{226}Ra , облучение их фотонами с максимальной энергией 24 МэВ в близких к оптимальным условиям, обеспечивающих выход $^{225}\text{Ac} = 550$ Бк/мкА·ч·мг ^{226}Ra (при времени облучения 30 часов и охлаждении мишени в течение 18 суток), с последующим радиохимическим выделением и концентрированием ^{225}Ac с использованием катионообменной хроматографии.

5. Впервые разработан способ получения препаратов ^{237}U с высокой удельной активностью с использованием метода сбора ядер отдачи, включающий изготовление композиционных мелкодисперсных порошкообразных мишеней из смеси порошков уранила и фторидов лантана и кальция, облучение их фотонами с максимальной энергией 24 МэВ в близких к оптимальным условиям, обеспечивающих выход (ЕОВ) $^{237}\text{U} = 1$ кБк/мкА·ч·мг ^{228}U (при времени облучения до 240 часов), с последующим радиохимическим выделением и концентрированием ^{237}U с использованием методов экстракции и ионного обмена. Способ защищен патентом РФ.

Публикации

1. Дмитриев С.Н., Маслов О.Д., Сабельников А.В., Белов А.Г. Получение ^{236}Pu в реакции $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$ // Радиохимия. 1998. Т. 40. – 6. С. 533-537.
2. Sabelnikov A.V., Dmitriev S.N., Maslov O.D. Production of the ^{236}Pu and ^{237}U in (γ, n) Reactions. // Workshop. Monitoring of Natural and Man-Made Radionuclides and Heavy Metal Waste in Environment, Abstracts, 2-5 Nov. 1999, Dubna, Russia, Dubna, 1999, p.91.
3. Dmitriev S.N., Maslov O.D., Sabelnikov A.V., Belov A.G. Production of ^{225}Ac in the $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ reaction // Scientific Report 1997-1998, FLNR, Joint Inst. Nucl. Research. –Dubna, 2000. –P.332.
4. Sabelnikov A.V., Maslov O.D., Belov A.G., Dmitriev S.N. Production of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ in the $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$ reaction // Scientific Report 1997-1998, FLNR, Joint Inst. Nucl. Research. –Dubna, 2000. – P.333.
5. Sabelnikov A.V., Dmitriev S.N., Maslov O.D. Production of $^{99}\text{Mo} (^{99\text{m}}\text{Tc})$ and ^{237}U in (γ, n) Reactions. // NRC5: 5th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, Extended Abstracts, Sept. 3-8, Pontresina, Switzerland, 2000, pp.692-693.
6. Sabelnikov A.V., Dmitriev S.N., Maslov O.D. Possibility of Production of $^{99}\text{Mo} (^{99\text{m}}\text{Tc})$ and ^{237}U in Photonuclear Reactions on the MT-25 Compact Accelerator of Electrons. // III Russian Conference on Radiochemistry, Radiochemistry-2000, Thesis of Reports, 28 Nov.- 1 Dec. 2000, St. Petersburg, 2000, p.252.
7. Zaitseva N.G., Dmitriev S.N., Maslov O.D., Starodub G.Ya., Sabelnikov A.V., Shishkin S.V., Shishkina T.V. Radioisotopes in Life Sciences. Production of High-Pure Radionuclide Sources at FLNR, JINR // Radionuclides and Heavy Metals in Environment / Ed. Frontasyeva M.V. et. al. Kluwer Academic Publishers, 2001. –P.107-112.
8. Sabelnikov A.V., Dmitriev S.N., Maslov O.D., Belov A.G. Production of ^{225}Ac in the $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ reaction // 14th Radiochemical Conference, 14th – 19th April 2002, Mariánské Lázně, Czech Republic, Booklet of Abstracts, 2002, p.224.
9. Maslov O.D., Dmitriev S.N., Sabelnikov A.V. Possibilities of production of technetium short-lived radioactive isotopes // The 3 Russian-Japanese Seminar on

- Technetium, June 23 – July 1 2002, Dubna, Russia, Extended Synopses, 2002, pp.104 - 106.
10. Sabelnikov A.V., Maslov O.D., Dmitriev S.N., Belov A.G. Production of ^{225}Ac in photonuclear reaction on the microtron MT – 25 // Scientific Report 2001-2002, FLNR, Joint Inst. Nucl. Research. –Dubna, 2003. –P.187.
 11. Sabelnikov A.V., Maslov O.D., Gustova M.V., Molokanova L.G., Dmitriev S.N., Belov A.G. Production of ^{237}U in $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ reaction by means of recoil nucleus collection // Scientific Report 2001-2002, FLNR, Joint Inst. Nucl. Research. –Dubna, 2003. –P.188.
 12. Maslov O.D., Sabelnikov A.V., Gustova M.V., Molokanova L.G., Dmitriev S.N. Use of the photonuclear reactions for environmental research // First Coordination Meeting on Perspectives of Life Sciences Research at Nuclear Centers, 21st – 27th September 2003, Riviera, Zlatny Piasatsi (Golden Sands), Bulgaria, Programme, Abstracts, List of Participants, 2003, pp.40 - 41.
 13. Sabelnikov A.V., Maslov O.D., Molokanova L.G., Gustova M.V., Dmitriev S.N. $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator based on molybdenumcarbonyl with using $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$ reaction // First Coordination Meeting on Perspectives of Life Sciences Research at Nuclear Centers, 21st – 27th September 2003, Riviera, Zlatny Piasatsi (Golden Sands), Bulgaria, Programme, Abstracts, List of Participants, 2003, p.53.
 14. Сабельников А.В., Маслов О.Д., Дмитриев С.Н. Производство ^{237}U в реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ с использованием микротрона МТ-25 // Четвертая российская конференция по радиохимии «Радиохимия – 2003», 20-25 октября 2003, Озерск, Россия, тезисы докладов, 2003, с.298.
 15. Маслов О.Д., Дмитриев С.Н., Сабельников А.В. Перспективы получения радионуклидов для ядерной медицины и радиозологии на электронном ускорителе – микротроне МТ-25 // Четвертая российская конференция по радиохимии «Радиохимия – 2003», 20-25 октября 2003, Озерск, Россия, тезисы докладов, 2003, с.299.
 16. Maslov O.D., Dmitriev S.N., Sabelnikov A.V., Gustova M.V., Molokanova L.G., Belov A.G. Production of Radioactive Isotopes by Photonuclear Reactions Using the MT-25 Microtron // Эрдэм Шинжилгээний Бичиг (Scientific Transactions), No. (10). –Ulaanbaatar, 2003. –С. 50-55.
 17. O.D.Maslov, S.N. Dmitriev, Sabelnikov A.V., Gustova M.V., Molokanova L.G., Belov A.G. Possibility of Production of Radioactive Isotopes for Bio-Medical Research, Nuclear Medical Application and Ecology by Photonuclear Reactions // Book of Abstracts. The Fifth International Conference “Modern Problems of Nuclear Physics”, Samarkand, Uzbekistan, 12-15 August 2003, Samarkand. –P.307 - 308.
 18. Густова М.В., Дмитриев С.Н., Маслов О.Д., Молоканова Л.Г., Оганесян Ю.Ц., Сабельников А.В. Способ получения изотопа урана-237. Патент РФ № 2262759 от 18.11.2003.
 19. Сабельников А.В. Маслов О.Д., Густова М.В., Белов А.Г., Дмитриев С.Н. Получение ^{237}U в фотоядерной реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ на ускорителе электронов –

- микротроне МТ-25. Препринт ОИЯИ Р12-2004-193. Дубна, 2005, 8 с. (принято к публикации в журнале «Радиохимия»)
20. Маслов О.Д., Сабельников А.В., Дмитриев С.Н. Получение ^{225}Ac в фотоядерной реакции $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ на ускорителе электронов – микротроне МТ-25. Препринт ОИЯИ Р12-2004-209. Дубна, 2005, 8 с. (принято к публикации в журнале «Радиохимия»)
 21. Сабельников А.В., Маслов О.Д., Молоканова Л.Г., Густова М.В., Дмитриев С.Н. Получение ^{99}Mo и $^{99\text{m}}\text{Tc}$ в фотоядерной реакции $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$ на ускорителе электронов – микротроне МТ-25. Препринт ОИЯИ Р12-2004-210. Дубна, 2005, 8 с. (принято к публикации в журнале «Радиохимия»)
 22. Сабельников А.В., Маслов О.Д., Густова М.В., Белов А.Г., Дмитриев С.Н. Применение фотоядерной реакции $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ для разделения и концентрирования урана-237 // II Международный симпозиум «Разделение и концентрирование в аналитической химии и радиохимии», 25-30 сентября 2005, Краснодар, Россия, Материалы II Международного симпозиума, 2005, с. 254-255.
 23. Маслов О.Д., Сабельников А.В., Густова М.В., Дмитриев С.Н. Получение, разделение и концентрирование радионуклидов для биомедицинских и экологических исследований, полученных в результате фотоядерных реакций // II Международный симпозиум «Разделение и концентрирование в аналитической химии и радиохимии», 25-30 сентября 2005, Краснодар, Россия, Материалы II Международного симпозиума, 2005, с. 373-375.

Получено 13 января 2006 г.