

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



2311-76  
12 - 9283

Д-405

625/2-76

В.П.Джелепов, В.А.Халкин

НЕЙТРОНОДЕФИЦИТНЫЕ РАДИОАКТИВНЫЕ НУКЛИДЫ  
Некоторые вопросы получения  
и перспективы применения

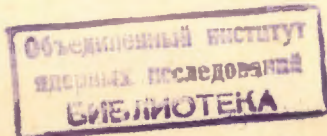
**1975**

12 - 9283

В.П.Джелепов, В.А.Халкин

**НЕЙТРОНОДЕФИЦИТНЫЕ РАДИОАКТИВНЫЕ НУКЛИДЫ**  
Некоторые вопросы получения  
и перспективы применения

Направлено на 26 Всесоюзное совещание по ядерной спектроскопии и структуре ядра. Баку, 1976.



Джелепов В.П., Халкин В.А.

12 - 9283

Нейтрондефицитные радиоактивные нуклиды. Некоторые вопросы получения и перспектив применения

Высокие энергии и интенсивности пучков протонов сильноточных ускорителей - мезонных фабрик открывают интересные возможности производства многих радиоактивных нейтрондефицитных нуклидов, нужных для решения ряда научно-технических задач. Источником таких нуклидов являются реакции глубокого расщепления ядер частицами высоких энергий. Выполненные расчеты показали, что, используя этот метод, на мезонных фабриках можно получать большие количества разнообразных ядер, в том числе и таких, которые не образуются при облучениях мишеней на обычных циклотронах низких энергий и в ядерных реакторах. В статье дается краткий обзор состояния и перспектив развития этого важного направления использования мезонных фабрик.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований

Дубна 1975

## I.

В настоящее время в науке и технике используются, в основном, радиоактивные нейтронизбыточные нуклиды, образующиеся в атомных реакторах в  $(n, \gamma)$ -реакциях и при делении ядер  $^{235}\text{U}$  тепловыми нейтронами. Такое положение, несомненно, сохранится и в будущем, причем с развитием ядерной энергетики все время будет нарастать ежегодное количество реакторных шлаков, активность которых составит сотни мекюри, а массы - десятки тонн /табл. 1/. К концу этого десятилетия, согласно прогнозам, мощность АЭС достигнет 150 000 МВт. Это означает, что процессы переработки ядерного горючего могут стать источниками не только долгоживущих радиоактивных, но и стабильных нуклидов. Радиохимические предприятия наряду с ураном, плутонием и актинидами будут производить родий, палладий, и ксенон в количествах, больших, чем их добывается в настоящее время из природных источников.

## II.

Производство радиоактивных нейтрондефицитных нуклидов в настоящее время базируется, в основном, на небольших ускорителях заряженных частиц. По сравнению с теми количествами нейтронизбыточных нуклидов, которые поставляются атомными реакторами, их реально доступные активности чрезвычайно малы. Масштабы производства часто измеряются в милли- и даже микрокюри, при очень высокой стоимости продукции, которая обусловлена, главным образом, затратами на эксплуатацию ускорителя. Например, 1 мкКюри  $^{26}\text{Al} / T_{1/2} = 7,4 \cdot 10^5 \text{ лет}$  стоит около 40 000 долларов.

Таблица I /1/

Количество долгоживущих и стабильных продуктов деления  $^{235}\text{U}$ , образующихся ежегодно в реакторах атомных электростанций на 1000 МВт установленной электрической мощности

Нуклид	Период полураспада	Активность	Масса	Область применения
$^{85}\text{Kr}$	10,4 год	150 кКюри	0,4 кг	Источники света
$^{90}\text{Sr}(+^{90}\text{Y})$	28 лет	1200 x 2 кКюри	7 кг	Источники тока
$^{137}\text{Cs}(+^{137\text{m}}\text{Ba})$	30 лет	1900 x 2 кКюри	22 кг	Источники тока, $\beta$ -излучатели
$^{147}\text{Pm}$	2,6 год	7500 кКюри	8 кг	Источники тока, X-излучатели
$^{99}\text{Tc}$	$2,1 \cdot 10^5$ лет	150 Кюри	9 кг	Металлургия, катализ
Rh	стаб.	-	13 кг	Химическая промышленность
Pd	стаб.	-	35 кг	- " -
Xe	стаб.	-	79 кг	Светотехника, медицина

Для производства этого количества по реакции  $^{26}\text{Mg}(p, n)^{26}\text{Al}$ , мишень должна экспонироваться в пучке протонов с энергией 22 МэВ около  $6 \cdot 10^5$  мкА-час<sup>1/2</sup>. Несмотря на высокую стоимость, спрос на так называемые циклотронные изотопы постоянно растет. Для стран социалистического содружества коммерческое производство нейтронодефицитных радионуклидов организовано в СССР<sup>1/6</sup> на базе специально построенного для этой цели циклотрона с энергией по дейтонам, альфа-частицам и протонам 21; 42 и 22 МэВ соответственно. Номенклатура циклотронных изотопов включает несколько десятков наименований, но многие из них производятся в небольших количествах, не удовлетворяющих имеющиеся в настоящее время потребности.

Производство нейтронодефицитных радионуклидов в странах Западной Европы, вероятно, того же порядка величины, что и в СССР. Используются как обычные низкоэнергетические циклотроны / $E_p \leq 24$  МэВ,  $J \sim 0,5$  мА/, так и изохронные циклотроны / $E_p \leq 80$  МэВ,  $E_d \leq 90$  МэВ,  $J = 6-9$  мкА/, недавно построенные в Юлихе /ФРГ/ и Лувене /Бельгия/. Существенно шире применяются радиоактивные препараты циклотронного происхождения в США, где на их изготовление занято несколько десятков ускорителей низких энергий. Однако первый качественный скачок в расширении производства и снижении стоимости продукции был осуществлен в США благодаря сооружению в 1972 году Брукхэвенского изготовителя изотопов - BLIP (Brookhaven Linac Isotope Producer)<sup>1/3</sup>.

### III.

BLIP служит гасителем избыточного протонного пучка с энергией 200 МэВ линейного ускорителя - инжектора синхротрона на 33 ГэВ. Для производства изотопов используется периодически отклоняемый от инжектирующего тракта пучок протонов от линака со средней интенсивностью 180 мкА. Поскольку облучение мишеней производится параллельно с работой синхротрона, затраты на эксплуатацию линейного ускорителя для этих целей существенно снижаются. BLIP позволяет облучать од-

новременно до десяти не зависимых друг от друга мишеней, расположенных вдоль оси протонного пучка. Все устройство погружено в бак, залитый водой на глубину 10 м. Сечение пучка перед входом в первую мишень - около  $3 \text{ см}^2$ . Высокие тепловые нагрузки материалов мишеней - до  $1,5 \text{ кВт.см}^{-3}$  - требуют эффективного теплоотвода, который осуществляется водой, омывающей переднюю и заднюю стенки мишени. Расход охлаждающей воды - до  $20 \text{ л/мин}$  на мишень. Ввод воды непосредственно в зону облучения приводит к ее активации из-за образования  $^{14}\text{O} / T_{1/2} = 71 \text{ с/}$ ;  $^{15}\text{O} / T_{1/2} = 124 \text{ с/}$ ,  $^{13}\text{N} / T_{1/2} = 9,9 \text{ мин/}$ ,  $^{11}\text{C} / T_{1/2} = 20,5 \text{ мин/}$ ;  $^7\text{Be} / T_{1/2} = 53 \text{ дня/}$ ;  $^3\text{H} / T_{1/2} = 12,3 \text{ года/}$ . В воде также присутствуют радиоактивные нуклиды, которые образуются при облучении нержавеющей стали - материала контейнеров для мишеней протонами на энергию 100 - 200 МэВ. Поэтому отводящие воду трубы имеют биологическую защиту, а вода циркулирует в замкнутом контуре, в который включены система очистки от радиоактивных нуклидов и реактор для рекомбинации  $\text{H}_2$  и  $\text{O}_2$ , образующихся при радиолитическом разложении воды.

Установка BLIP снабжена системами дистанционного выполнения операций с мишенями и автоматическими устройствами контроля и защиты.

Сделанное выше краткое перечисление основных узлов и конструктивных особенностей BLIP достаточно четко показывает, что для утилизации интенсивных пучков протонов с энергией выше 100 МэВ требуется весьма сложное в конструктивном отношении сооружение. Однако сделанные затраты должны окупаться относительно быстро, благодаря большим скоростям накопления в мишенях нейтронодефицитных радионуклидов, при оптимально выбранных энергиях протонов, материалах мишеней и их толщинах. Например, при часовом облучении на BLIP выход  $^{123}\text{I}$  - /  $T_{1/2} = 13,1 \text{ час/}$  достигает  $2,5 \text{ Кюри}$ , а  $^{82}\text{Sr} / T_{1/2} = 25 \text{ сут/}$  -  $20 \text{ мКюри}$ . Эти два нуклида, а также  $^{127}\text{Xe} / T_{1/2} = 36,6 \text{ дня/}$ ;  $^{201}\text{Tl} / T_{1/2} = 73 \text{ час/}$ ;  $^{52}\text{Fe} / T_{1/2} = 8,5 \text{ час/}$ ;  $^{97}\text{Ru} / T_{1/2} = 2,9 \text{ дня/}$  составляют основную номенклатуру радиоактивных препаратов, изготавливаемых на BLIP, который

ориентирован в первую очередь на нуклиды, нужные для медико-биологических исследований.

#### IV.

Существенно более благоприятные, чем на BLIP, условия для получения большого количества высокоактивных препаратов разнообразных нуклидов, будут на Лос-Аламосской мезонной фабрике - LAMPF (Los Alamos Meson Physics Facility)<sup>/4,5/</sup>.

Ускоритель LAMPF - самый крупный из построенных в настоящее время сильноточных протонных ускорителей: энергия протонов 800 МэВ, интенсивность до 1000 мкА /табл. 2/. Эти установки предназначены, прежде всего, для получения интенсивных потоков нуклонов, мезонов и нейтрино, нужных для исследования структуры атомных ядер и решения других задач ядерной физики. Первичный протонный пучок проходит через ряд различных мишеней, на которых рождаются вторичные частицы, в результате чего снижается интенсивность и энергия протонов и происходит заметная дефокусировка пучка. Эти протоны, выполнившие свою основную задачу в физическом эксперименте, перед поглощением в ловушке могут использоваться для изготовления радиоактивных нуклидов. Так как стоимость первичного протонного пучка, связанная с эксплуатацией ускорителя, исключается из расходов на производство радиоактивных

Таблица 2

Сильноточные ускорители протонов - мезонные фабрики, строительство которых закончено к середине 1975 г.

Сокращенное название	Энергия протонов МэВ	Проектный ток мкА (х)	Местоположение
LAMPF	600 - 800	100 - 1000	Лос-Аламос, США
SJN	590	100	Виллинген, Швейцария
TRJUMF	180 - 520	100 - 200	Ванкувер, Канада

х) В 1975 г. ток был 20, 10 и 0,1 мкА, соответственно.

нуклидов, последние получают с относительно низкой себестоимостью.

Предварительно выполненные для LAMPF оценки показали, что после прохождения через используемые в физическом эксперименте мишени энергия протонов снизится с 800 до 700 МэВ, интенсивность - до  $400 \pm 100$  мкА и площадь поперечного сечения дефокусированного пучка будет около  $180 \text{ см}^2$ . Для утилизации этого пучка перед ловушкой протонов располагается устройство для производства изотопов IPF (Isotope Production Facility), позволяющее облучать одновременно шесть мишеней толщиной по 25 мм. Каждая мишень, независимо от других, может быть введена в зону облучения и выведена из нее. Такая независимость операций по съему и постановке позволит выполнять их без перерыва в облучении других мишеней и выбирать оптимальную экспозицию для заданной пары мишень - продукт. Предусмотрено, что, по крайней мере, одно место установки мишени будет иметь устройство для сбора газообразных продуктов ядерных реакций в процессе облучения.

Выполненные расчеты показывают, что если первая мишень бомбардируется протонами с энергией 700 МэВ, то за шестой их энергия снижается до 500 МэВ. За счет многократного рассеивания протонов резко ослабляется интенсивность пучка от мишени к мишени, и последняя облучается в пять раз слабее, чем первая. Благодаря дефокусировке первичного пучка тепловая нагрузка на мишени IPF существенно меньше, чем на BLIP -  $40 \text{ Вт. см}^{-3}$ . Однако общее энерговыделение очень велико - до 15-20 кВт. Охлаждение мишеней осуществляется водой, расход которой составляет 4-8 л/мин на одну мишень. Проблемы теплоотвода и радиационной стойкости материалов мишени существенно упрощаются, если для облучения интенсивными пучками протонов использовать металлы. Вероятно, металлические мишени будут единственными, по крайней мере, в первый период работы IPF. Одно из важных требований к металлам для мишеней - высокая их чистота по отношению к элементам, для производства радиоактивных изотопов которых служат эти металлы. В противном случае снижа-

ется удельная активность препаратов и могут возникнуть трудности при радиохимической сепарации.

В целом проблемы, связанные с производством радиоактивных нуклидов на IPF, аналогичны тем, которые рассматривались выше для BLIP. Несколько сложнее только задачи радиохимической переработки облученных мишеней, так как спектр радиоактивных нуклидов, образующихся при взаимодействии протонов с энергией 500-700 МэВ с атомными ядрами, существенно богаче, чем для протонов 100-200 МэВ.

## V.

Основными реакциями на ядрах среднего атомного веса под действием протонов с энергией меньше 1 ГэВ являются реакции глубокого расщепления. Согласно модельным представлениям, они идут в две стадии<sup>17</sup>. На первой, каскадной, выбиваются один или несколько нуклонов и легких частиц и при энергии протонов выше 400 МэВ интенсивно рождаются мезоны. Каскад протекает за время около  $10^{-22}$  с. После каскадного процесса остаются ядра, энергия возбуждения которых может лежать от единиц до нескольких сотен МэВ. Возбуждение равномерно распределено по всему ядерному веществу. Время достижения равновесных условий оценивается примерно в  $10^{-21} - 10^{-20}$  с. Считается, что до достижения равновесия, даже при энергиях возбуждения, равных полной энергии связи нуклонов в ядре, может испариться не более 5% нуклонов от испаряющихся впоследствии.

Послекаскадные возбужденные ядра, в зависимости от энергии возбуждения  $E^*$ , могут жить от  $10^{-17}$  до  $10^{-22}$  с соответственно для  $E^*$  в несколько десятков и несколько сотен МэВ. Возбуждение снимается последовательным испарением нуклонов или легких ядер со средней кинетической энергией в несколько МэВ. В основном из ядер среднего атомного веса испаряются нейтроны. Подразумевается, что каждый акт испарения происходит независимо от предыдущего, так как это рассматривается для компаунд-ядер. Испаренные частицы должны распределяться в движущейся системе

изотропно. После процесса испарения остаются ядра, которые называются первичными продуктами расщепления. Большинство наблюдаемых в экспериментах ядер является продуктами цепочек распада одного или нескольких первичных ядер.

В зависимости от атомного номера  $Z$  и массового числа  $A$  энергия возбуждения  $E^*$  послекаскадных ядер может сниматься не только испарением, но и делением, которое будет конкурировать с испусканием частицы на каждой ступени испарительного процесса. Деление наиболее вероятно для транссвинцовых ядер, но при энергиях, достаточных для деформации ядер, возможно и для более легких элементов. Осколки деления возбужденного ядра будут снижать энергию испарением нейтронов, образуя первичные продукты деления.

Кроме продуктов реакций глубокого расщепления и деления при взаимодействии протонов высокой энергии с тяжелыми ядрами-мишенями ( $A_t \approx 200$ ), экспериментально были обнаружены легкие ядра с  $A < 30$ , которые назвали продуктами процесса фрагментации. Сечения их образования при  $E_p = 500-700$  МэВ около десятка микробарн. Физическая сущность процесса пока еще не полностью понятна. Это может быть либо резко асимметричное деление, либо тройное деление, либо очень быстрый процесс отрыва легких ядер, протекающий во время установления энергетического равновесия на каскадной стадии реакции глубокого расщепления.

Вероятность образования продуктов ядерных реакций тяжелых элементов с быстрыми протонами хорошо иллюстрирует зависимость  $\sigma = \phi(A)$  / рис. 1/, полученная при облучении висмута протонами с энергией 800 МэВ<sup>4/</sup>. Кривая показывает, что даже при облучении тяжелых цисториевых элементов, в основном, идут реакции глубокого расщепления с преимущественным образованием нуклидов, близких ( $\Delta A \leq 20$ ) к ядру-мишени. Элементы, образовавшиеся в реакциях расщепления, обогащены нейтронодефицитными изотопами, а в реакциях деления - нейтроноизбыточными /рис. 2/.

Полученные экспериментально относительно простые зависимости сечений образования продуктов расщепления от атомного веса последних инициировали поиски

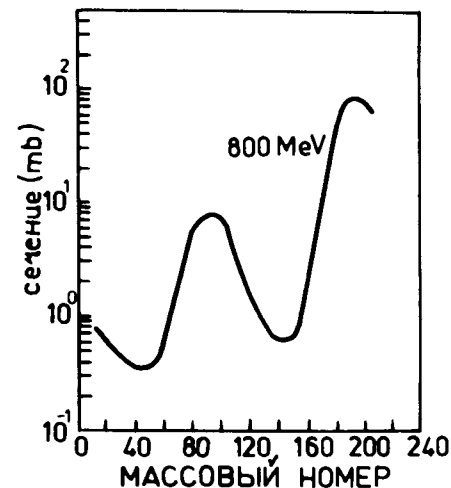


Рис. 1. Выходы продуктов бомбардировки висмута протонами высоких энергий<sup>4/</sup>.

эмпирической формулы для расчета выходов отдельных нуклидов при заданном элементе мишени и энергии протонов. Первые попытки в этом направлении были предприняты Рудстамом, который предложил формулу для предсказания сечений в интервале от сотен миллибарн до нескольких микробарн, при облучении ядер-мишеней с массовыми числами  $-25 < A_t < 210$  протонами с энергией  $100 \text{ МэВ} \leq E_p \leq 30 \text{ ГэВ}$ <sup>9/10/</sup>. Эта формула была несколько модифицирована<sup>10/</sup>, что улучшило соответствие расчетных данных экспериментальным, и в окончательной форме приняла следующий вид:

$$\sigma(Z, A) = \frac{\hat{\sigma} P(d \cdot A_t^{-e'})^{2/3}}{1,79 [e^{PA_t} (1 - 2e^{-1/3} PA_t) - 1 + 2e^{-1/3} + 2e^{-1/3} PA_t]} \times \exp [PA - R(Z - (S_c - U_c A_t / Z_t + V_c A_t) A + TA^2)^{3/2}], \quad /1/$$

где  $Z$  - атомный номер заданного нуклида,  $A$  - его массовое число,  $P = a' E_p^{-b'}$  /  $E_{p < 2400 \text{ МэВ}}$ ,  $R = d' A^{-e'}$ ,  $\hat{\sigma} = \pi (1,26 A_t^{1/3} \cdot 10^{-13})^2 \exp(-g' + h' A_t)$ . ( $E_p \geq 240 \text{ МэВ}$ )

$S = 0,616$        $a' = 20 \pm 7$        $g' = 0,25 \pm 0,12$   
 $U = 0,06$        $b' = 0,77 \pm 0,06$        $h' = 0,0074 \pm 0,0016$   
 $V = 0,00005$        $d' = 11,8 \pm 3,0$   
                           $e' = 0,45 \pm 0,07$   
 $T = 0,00038$ .

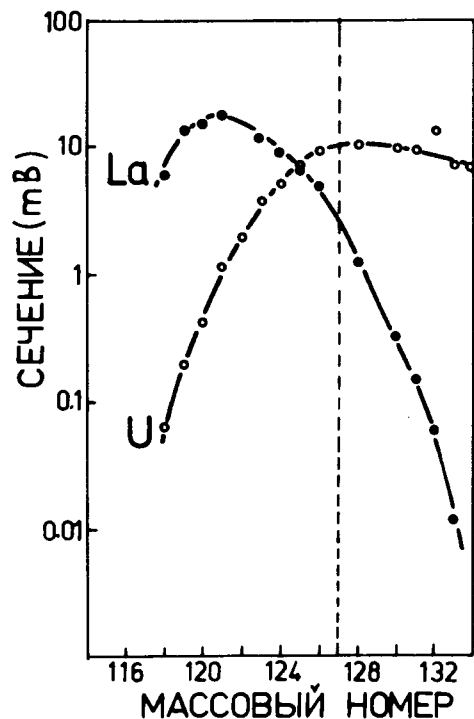


Рис. 2. Независимые выходы изотопов йода в ядерных реакциях расщепления лантана и деления урана протонами с энергией 600 МэВ<sup>18/</sup>.

Рассчитанные по этой формуле выходы радиоактивных нуклидов, образующихся при облучении протонами с энергией 600 МэВ различных элементов-мишеней, хорошо, в пределах фактора 2, согласуются с экспериментальными данными, если  $A_t < 100$  (V, Co, As, Nb) /рис. 3/. Но для более тяжелых мишеней (Ta, Bi) экспериментально измеренные выходы для нуклидов с большим дефицитом нейтронов оказались много выше расчетных, тогда как нейтронообогащенные нуклиды образуются с выходами, на несколько порядков меньше, чем следует из предсказаний /рис. 4 и 5/. Но, несмотря на некоторую неточность, формула /1/, несомненно, полезна для оценки оптимальных условий получения заданных радионуклидов в реакциях расщепления.

### VI.

Рассчитанные по уравнению Рудстама сечения относятся к тонким мишеням - порядка долей грамма на квадратный сантиметр. Производственные мишени IPF проектируются толстыми, до 30 г/см<sup>2</sup>. При прохождении пучка протонов высокой энергии через одну или несколько таких мишеней, в результате снижения его интенсивности и энергии частиц должны экспоненциально спадать по глубине мишени эффективные сечения реакций расщепления, рассчитанные на основании исходной интенсивности пучка. Действительно, это так

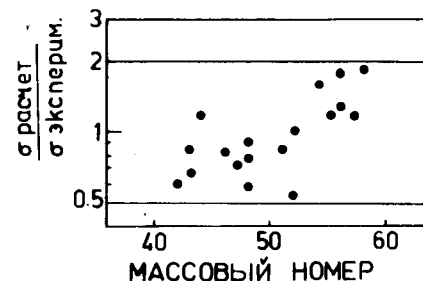


Рис. 3. Сравнение расчетных и экспериментальных сечений реакций расщепления для кобальта, облученного протонами с энергией 600 МэВ<sup>11/</sup>.



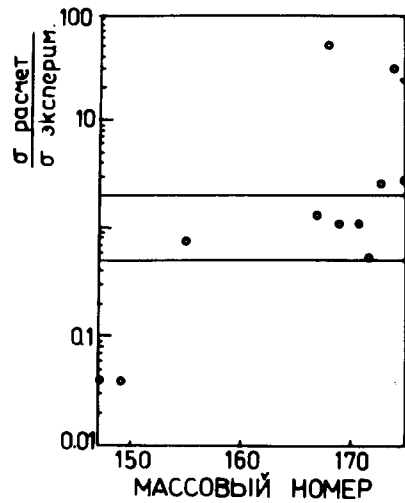


Рис. 4. Сравнение расчетных и экспериментальных сечений реакций расщепления для тантала, облученного протонами с энергией 600 МэВ<sup>/11/</sup>.

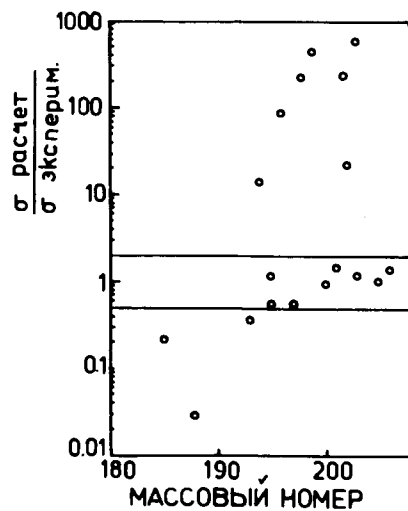


Рис. 5. Сравнение расчетных и экспериментальных сечений реакций расщепления для висмута, облученного протонами с энергией 600 МэВ<sup>/11/</sup>.

и происходит для отдаленных от элемента-мишени продуктов. Но для нуклидов с относительно близкими массовыми числами наблюдается рост эффективных сечений до некоторой глубины мишени, которая тем больше, чем выше энергия протонов. Например, при облучении железа протонами с энергией 1 ГэВ эта глубина около 7 см, а при 600 МэВ - около 4 см. Изменение эффективных сечений в толстых мишенях приближенно описывается следующей эмпирической формулой:

$$\lg \frac{\sigma}{\sigma_0} = \left( -\frac{10}{E_p} + \frac{21}{(7 + \Delta A)(x + 50)} \right) x \cdot (E_p \leq 1 \text{ ГэВ}), \quad /2/$$

где  $\sigma$  - эффективное сечение образования нуклида на глубине  $x$  г/см<sup>2</sup>,  $\sigma_0$  - сечение в тонкой мишени.

При расчете выходов радионуклидов из толстой мишени необходимо, строго говоря, учитывать изменения эффективных сечений по ее глубине. В этом случае формула для расчета накопившейся в течение часа в мишени толщиной  $x_0$  активности заданного относительно долгоживущего  $/T_{1/2} \gg 1 \text{ час}/$  нуклида, будет иметь вид:

$$Y_{\text{мКюри. час}}^{-1} = 1,63 \cdot 10^{-11} \frac{\int_0^{x_0} \sigma(x) dx \cdot J}{T_{1/2} A_t}, \quad /3/$$

где  $\sigma$  в мб,  $x$  в г/см<sup>2</sup>,  $J$  - интенсивность пучка протонов в секунду,  $T_{1/2}$  - период полураспада получаемого нуклида в часах,  $A_t$  - массовый номер элемента-мишени.

Но поскольку точное определение зависимости сечения от глубины - довольно трудоемкая процедура, без больших погрешностей можно для мишеней толщиной 30-40 г/см<sup>2</sup> и меньше и энергии протонов 500-700 МэВ считать сечения постоянными и равными  $\sigma_0$ , так как эффективные сечения всех образующихся с большими выходами нуклидов отличаются от этой величины не более чем на 50% /табл. 3/. При таком приближении активность нуклида, образующегося с сечением  $\sigma$  /мб/ при облучении толстой мишени протонами высоких энергий, можно рассчитать по формуле /4/:

Таблица 3

Выходы некоторых продуктов расщепления (в миллибарнах) из тонких фольг-мишеней, облученных протонами с энергией 600 МэВ внутри толстой железной сборки (30x30x50 см)/II/

Толщина	Материал мишени									
	железо			ниобий				висмут		
	<sup>54</sup> Mn	<sup>48</sup> V	<sup>44m</sup> Sc	<sup>88</sup> Zr	<sup>82</sup> Sr	<sup>72</sup> Se	<sup>203</sup> Pb	<sup>195</sup> At	<sup>175</sup> Hf	
г/см <sup>2</sup>										
3,7	30	17	6,8	39	31	3,8	62	30	9,1	
26,4	39	15	5,3	46	29	2,8	86	26	5,2	
62,4	34	14	4,5	3,7	21	1,5	76	27	1,7	

$$Y_{\text{Кюри}} = 1,63 \cdot 10^{-14} \frac{\rho_i}{A_i} \times J \sigma_0 [1 - \exp(-0,693 \frac{t_i}{T_{1/2}})], \quad /4/$$

где  $\rho_i$  - плотность мишени /г/см<sup>3</sup>/, J - интенсивность пучка протонов в секунду, x - толщина мишени в сантиметрах,  $t_i$  - время облучения.

## VII.

Работа ускорителя - мезонной фабрики в Лос-Аламосе - на предусмотренных проектом оптимальных режимах позволит использовать для изготовления радиоактивных нуклидов протоны с энергией 700 МэВ, в количестве около 2500 мА-час в год. Большие активности и многообразие продуктов реакций расщепления, которые предполагается получать, потребовали от занятой реализацией этой программы группы LAMPF изучения вероятных областей применения новой продукции и составления более или менее достоверных планов производства. Ответы на вопросы качественного, номенклатурного характера были во многих случаях получены при консультациях с потенциальными потребителями. При этом исходили а/ из уже имеющегося чрезвычайно богатого опыта использования других изотопов тех же самых элементов или их химических аналогов /14,15/; б/ из соображений о более удобных для потребителей ядерных

характеристиках и изотопной чистоты радионуклидов; в/ из того факта, что ряд радионуклидов, в настоящее время получающихся в очень малых количествах, станет доступен для широкого применения в науке и технике. В последнем случае в качестве примера можно привести упоминавшийся выше <sup>26</sup>Al. Предполагается, что на LAMPF можно будет изготавливать 26 мкКюри в месяц этого долгоживущего изотопа алюминия /16/, что в 50-100 раз больше, чем на обычных циклотронах. Относительно достоверные оценки о перспективах сбыта в США радиоактивных препаратов, получаемых на LAMPF, пока оказалось возможным сделать только для четырех нуклидов, которые и были положены в основу первоначальной производственной программы /табл. 4/.

<sup>67</sup>Ga. Самый долгоживущий изотоп галлия, распадающийся, главным образом, путем К-захвата и, кроме рентгеновских, испускающий  $\gamma$ -кванты с энергией, удобной для сканирования его положения в организме. Это чрезвычайно полезный, с точки зрения онкологии, радионуклид. Лимонно-кислый <sup>67</sup>Ga селективно концентрируется в опухолях мягких тканей. Показано, что это наиболее эффективный агент, помогающий с высокой точностью сканировать глубоколежащие новообразования. Без точного знания локализации опухоли в организме больного бессмысленно и вредно облучение пациентов отрицательными пионами. А так как LAMPF должен стать центром мезонной терапии, то вопросам использования радионуклидов, в том числе и <sup>67</sup>Ga, для предшествующей облучению диагностики, уделяется большое внимание группой биомедицинского использования ускорителя.

<sup>32</sup>Si. Единственный изотоп кремния, пригодный для использования в качестве меченого атома. Несмотря на мало удобные ядерные характеристики, предполагается применение этого радионуклида в биохимических, физических, металлургических и химических исследованиях. Он может также использоваться для генерации небольших количеств <sup>32</sup>P высокой удельной активности.

<sup>123</sup>I. На сегодняшний день это наиболее важный изотоп медицинского назначения /13/. Использование его вместо <sup>131</sup>I позволит существенно повысить точность диагностики и эффективность радиотерапии, без повы-

Таблица 4

Предполагаемая годовая потребность в США в некоторых радионуклидах, запланированных для производства на LAMPF /16/

Нуклид	$T_{1/2}$	Активность	Нуклид	$T_{1/2}$	Активность
$^{67}\text{Ga}$	78 час	1200 Кюри	$^{123}\text{I}$	13,1 час	4000 Кюри
$^{32}\text{Si}$	500 лет	10 мКюри	$^{88}\text{Y}$	107 дней	900 Кюри

Таблица 5

Потенциально полезные радионуклиды, производство которых может быть организовано на LAMPF

Нуклид	$T_{1/2}$	Возможная область применения
$^{26}\text{Al}$	$7,4 \cdot 10^5$ лет	Меченый атом в разнообразных исследованиях
$^{42}\text{Ar}$	33 года	Генерация $^{42}\text{K}$ (14,6 час) - агро- и биохимические исследования
$^{44}\text{Ti}$	47 лет	Генерация $^{44}\text{Sc}$ (3,9 час) - медицинское сканирование костей
$^{68}\text{Ge}$	280 дней	Генерация $^{68}\text{Ga}$ (68 мин) - излучатель позитронов
$^{82}\text{Sr}$	25 дней	Генерация $^{82}\text{Rb}$ (75 сек) - медицинское сканирование сердца
$^{83}\text{Rb}$	83 дня	Генерация $^{83\text{m}}\text{Kr}$ - диагностика мускульной дистрофии
$^{127}\text{Xe}$	36 дней	Медицинское сканирование легких, исследование газовых потоков
$^{172}\text{Hf}$	~2 года	Генерация $^{172}\text{Lu}$ (6,7 дня) - физико-химические и металлургические исследования
$^{194}\text{Hg}$	30 лет	Генерация $^{194}\text{Au}$ (39 час) - меченый атом в разнообразных исследованиях

шения общей дозы облучения пациента. Предполагается, что введение  $^{123}\text{I}$  в медицинскую практику даст положительный эффект не только при изучении функции щитовидной железы, но и при замене им  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , который применяется в качестве радиоактивной метки в некоторых препаратах.

$^{88}\text{Y}$ . Изготовление этого радионуклида на LAMPF позволяет использовать его для фотонейтронных источников  $^{88}\text{Y} - \text{Be}$ . Основной составляющей гамма-излучения являются кванты с энергией  $1,836 \text{ МэВ} / 99,5\%$ . Благодаря этому выход нейтронов  $2,9 \cdot 10^6 \text{ н с}^{-1} \text{ Кюри}^{-1}$  несколько выше, чем из других фотонейтронных источников. Спектр нейтронов практически моноэнергетический  $/E_n = 151 \text{ кэВ}/$ . Предполагается выпуск 60 источников в год, по 15 Кюри  $^{88}\text{Y}$  в каждом.

Кроме перечисленных выше нуклидов, для производства на LAMPF были намечены радиоактивные изотопы примерно десяти элементов /табл. 5/. Приведенный в таблице список, безусловно, не является исчерпывающим, но и он достаточно хорошо иллюстрирует области применения радионуклидов, которые можно получать на ускорителях - мезонных фабриках.

Первоначально предполагалось, что в полном объеме программа производства радиоактивных препаратов на LAMPF будет реализована в 1973 году. Однако известные трудности с выводом ускорителя на проектную интенсивность 1-0,5 мА несколько отодвинули осуществление этих планов. О планах утилизации пучков протонов высоких энергий на ускорителях SIN и TRIUMF пока не сообщалось.

## VIII.

Таким образом, кроме BLIP, на сегодняшний день нет других примеров утилизации пучков сильноточных ускорителей протонов до энергий 200 МэВ и более для изготовления радиоактивных, преимущественно нейтрондефицитных нуклидов. Однако даже коллективно изложенные выше планы LAMPF показывают целесообразность работ в этом направлении.

Подготавливаемая сейчас реконструкция синхротрон-лотрона Лаборатории ядерных проблем в сильноточный фазотрон /Установка "Ф"/ предусматривает увеличение интенсивности выведенного пучка протонов  $E_p \sim 700 \text{ МэВ}$  до 30 мкА. Очевидно, что при такой интенсивности уже можно получать высокоактивные препараты некоторых относительно короткоживущих нуклидов. Например, по очень осторожным оценкам,  $^{123}\text{J}$  можно будет выделять из облучаемой мишени в непрерывном режиме /через  $^{123}\text{Xe}$ / в количествах 10-15 мКюри.мкА-час<sup>-1</sup>. Поэтому планируется перед ловушкой использованного в физических экспериментах пучка протонов установки "Ф" создать устройство для облучения толстых мишеней, позволяющее проводить их дистанционную смену или отбор газообразных продуктов ядерных реакций. Будут предприняты попытки получить препараты и некоторых других нейтрондефицитных нуклидов для использования в медицине и биологии.

Накопленный опыт работы будет чрезвычайно полезен для переноса его на строящиеся и проектируемые сильноточные ускорители, например, на суперциклотрон-ускоритель с интенсивностью протонного пучка в десятки миллиампер, при энергии протонов около 800 МэВ, принципиальная возможность создания которого доказана в последние годы в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ<sup>/17/</sup>.

#### Литература

1. V.Kouřim, O.Vojtěch. *Methods of Fission Product Separation from Liquid Radioactive Wastes*. *Atomic Energy Rev.*, 12, (2), 215 (1974).
2. T.P.Kohman, R.A.Rightmire, W.D.Ehmann, J.R.Simonton, *Aluminium 26: Properties, Production, Assay, Natural Occurrence and Potential Usefulness*. in "Radioisotopes in Scientific Research", v. I, ed. by Extermann R.C.Pergamon Pr, London, 1958, p. 1.
3. P.Richards, E.Lebowitz, L.G.Stang. *The Brookhaven Linac Isotope Producer (BLIP) BNL Rept. IAEA/SM-171/38 (1973)*.

4. H.A.O'Brien, M.E.Schillaci. *Isotopic Neutron Sources from the Los Alamos Meson Physics Facility (LAMPF)*. *Isotopes and Radiation Technology* 9 (1) 105 (1971).
5. B.J.Dropeski. *Proposed Targeting System and LASL Hot Cell and Radiochemistry Facilities*. *LASL Rpt. LA-4587-MS (1972)*, p. 15.
6. Н.Н.Краснов, П.П.Дмитриев, И.О.Константинов и др. *Производство радиоактивных изотопов на циклотроне ФЭИ*. В сб. *Производство изотопов*. Атомиздат, Москва, 1973 г., стр. 104.
7. A.C.Pappas, J.Alstad, E.Hagebø. *High Energy Nuclear Chemistry*. *Dep. of Chemistry. Univ. of Oslo Blindern, Norway, 1971*, p. 3.
8. J.Bergström. *Why Should We Investigate Nuclides Far off the Stability Line*. *Nucl.Instr. & Meth.*, 43 (1) 116 (1960).
9. G.Rudstam. *Systematics of Spallation Yields*. *Z.Naturforschung*, 21a (7), 1027 (1966).
10. K.F.Chackett, G.A.Chackett. *Spallation Reactions in Isotopically Enriched Targets*. *Nucl.Phys.*, A100 (3), 633 (1967).
11. *Accelerator-Produced Radioisotopes Program Quart. Rpt. Compt. and ed. by B.J.Dropesky, H.A.O'Brien, Jr., LASL Prog. Rpt. LA-5120-PR (1972)*.
12. M.E.Schillaci. *Radioisotope Production at LAMPF*. *LASL Rpt. MPDOT/MES-1 (1970)*.
13. *Proceedings of Int. Symp. on Radiopharmaceuticals and Labelled Compounds*. IAEA, Vienna, 1973.
14. *Proc. of Int. Conference on Radioisotopes in Scientific Research, Paris, Sept. 1957*. Ed. by R.C.Extermann, vol. 1, *Physics and Industry*, vol. 2, *Chemistry and Geology*, vol. 3, *Human and Animal Biology*, vol. 4, *Plant Biology and Some General Problems*. Pergamon Press, London, 1958.
15. *Proc. of Int. Conf. Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry*. Copenhagen, Sept. 1960. In three volumes, IAEA, Vienna, 1962.
16. H.A.O'Brien. *Radionuclides from LAMPF: Yields and Applications*. *LASL Rpt. LA-4587-MS (1972)*, p. 23.
17. В.П.Джелепов, В.П.Дмитриевский, В.В.Кольга. *Перспективы развития мезонных фабрик - суперциклотрон*. Препринт ОИЯИ, Р9-9066, Дубна, 1975.

Рукопись поступила в издательский отдел  
4 декабря 1975 года.