



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

3638/2-80

4/8-80
6-80-308

А.Ф.Новгородов, А.Колачковски, Нгуен Конг Чанг

МАССИВНАЯ РТУТНАЯ МИШЕНЬ
ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ИЗОТОПОВ ТАЛЛИЯ
НА ПУЧКЕ ПРОТОНОВ ВЫСОКОЙ ЭНЕРГИИ

Направлено в журнал "Радиохимия"

1980

Большинство так называемых циклотронных изотопов, успешно применяемых в различных областях науки и техники, производится на ускорителях заряженных частиц средней энергии ^{1,2/}. В связи с большим спросом на эти изотопы наметился еще один путь их получения, а именно: использование /а чаще - утилизация/ пучков частиц высоких энергий на исследовательских ускорителях ^{3-5/}. В настоящее время на сильноточных ускорителях планируется производство наиболее ценных изотопов /например, иода-123, индия-111, галлия-67 и др./ в количествах, достигающих несколько сотен кюри в год ^{6,7/}.

Большая масса облучаемых мишеней, а также широкий диапазон продуктов ядерных реакций, обусловленные высокой энергией частиц, значительно усложняют выделение и последующую очистку получаемых препаратов, поэтому понятно стремление исследователей разрабатывать такие мишени, выделение необходимого продукта из которых можно проводить селективно и по возможности без изменения химической формы материала мишени, то есть использовать мишени многократно. К настоящему времени накоплен достаточно большой опыт в разработке такого рода мишеней, особенно в связи с развитием так называемых ISOL* -установок, используемых для получения и исследования очень короткоживущих радионуклидов ^{8/}. Следует отметить, однако, что разработки мишеней для этих установок направлены в первую очередь на достижение максимально быстрых выделения и очистки радионуклидов /за единицы или даже десятые доли секунд/, поэтому в них применяются, как правило, высокотемпературные методы. Выделение же и очистка изотопов, используемых в решении прикладных задач, могут занимать /без существенных потерь за счет распада/ несколько часов, поэтому основной задачей разработки способов получения этих изотопов должно быть обеспечение максимальной надежности, селективности и простоты.

Целью настоящей работы являлось определение состава радиоактивных изотопов таллия и их выходов в массивной мишени из металлической ртути, облученной протонами с энергией 660 МэВ. Применение металлической ртути в качестве материала мишени имеет, на наш взгляд, то преимущество, что выделение изотопов таллия из больших количеств ртути не представляет труда и мо-

* ISOL - Isotope Separator On-Line.

жет проводиться достаточно быстро и полно при комнатной температуре /9,10/. Недостатком этой мишени может быть сравнительно низкое сечение образования изотопов таллия на протонах высокой энергии, однако ожидалось, что вклад реакций (p,α) будет несколько увеличен за счет уменьшения энергии протонов по мере прохождения их через массивную мишень.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Массивная мишень представляла собой 8 заполненных ртутью контейнеров из нержавеющей стали с внутренним диаметром 20 мм и длиной 50 мм, которые тщательно устанавливались по оси выведенного пучка протонов синхроциклотрона ОИЯИ. Между соседними контейнерами, а также перед первым и за последним помещались 9 наборов алюминиевых фольг диаметром 20 мм и весом $4,407 \times 10^{-2}$ г каждый, служащих мониторами пучка. Время облучения мишени составляло 600 с.

Химическая обработка начиналась спустя 5 часов после конца облучения. Ртуть из контейнеров переливалась в термостойкие химические стаканы. Контейнеры промывались двумя порциями по 4 мл разбавленной (4М) уксусной кислоты. Промывные растворы заливались в соответствующие содержащие ртуть стаканы, в которых при температуре $\sim 70^\circ\text{C}$ проводилась экстракция продуктов ядерных реакций в течение 1,5 часов при непрерывном перемешивании ртути и раствора. По мере испарения растворов добавлялись свежие порции 4М уксусной кислоты с тем, чтобы соотношение объемов ртути и раствора составляло ≈ 2 . В уксуснокислый раствор переходят в этих условиях практически полностью изотопы щелочных, щелочноземельных, редкоземельных элементов и таллия. Частично извлекаются также изотопы многих других элементов, таких, как галогены, технеций, рений, теллур, мышьяк, сурьма, гафний и др., однако количественно выход их в раствор не определялся.

Из водных растворов /объемом ~ 8 мл/ после их отделения от ртути проводилась сорбция изотопов таллия, а также щелочных, щелочноземельных и редкоземельных элементов на предварительно промытый 4М уксусной кислотой катионит Dowex 50x8 /2 г воздушной смолы, 200-400 меш/. Сорбция изотопов таллия и редкоземельных элементов на катионите за 15 мин /водяная баня/ практически количественна, так как определенные нами коэффициенты распределения указанных элементов в этих условиях составляют $\sim 10^3$ и $\sim 10^4$ мл/г смолы соответственно /рис. 1/.

Проводилось также повторное извлечение продуктов ядерных реакций из ртути при тех же условиях, что и первая экстракция, однако эта операция оказалась ненужной, так как радиоактив-

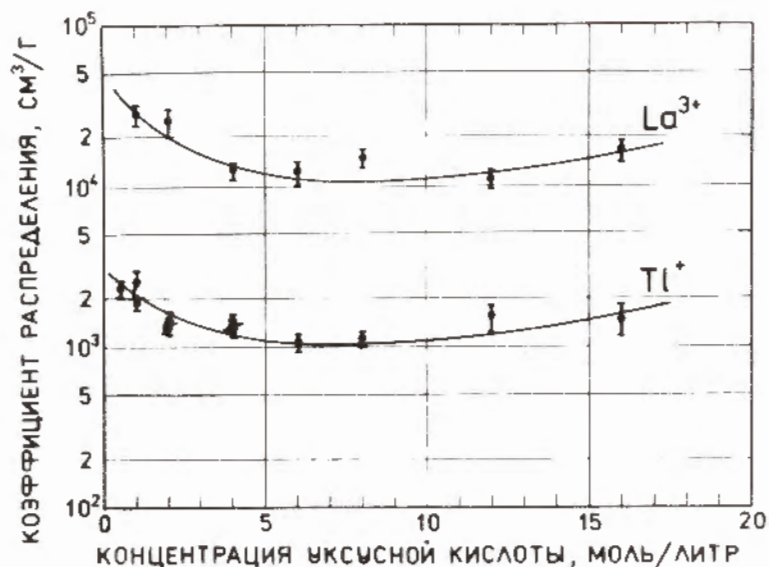


Рис. 1. Концентрационные зависимости коэффициентов распределения таллия и лантана между катионитом Dowex 50x8 и водными растворами уксусной кислоты.

ность растворов от второго извлечения составила менее 1% по отношению к радиоактивности растворов от первого извлечения. Растворы от второй экстракции объемом ~ 8 мл использовались для первой промывки катионообменных смол, которые затем окончательно промывались такими же объемами разбавленной уксусной кислоты и дистиллированной воды. Коэффициент очистки радиоталлия от ртути на данном этапе концентрирования составляет более 10^8 .

Измерения γ -излучения радиоактивных изотопов, сорбированных на катионитах, проводились с использованием Ge(Li)-детектора /с чувствительным объемом 27 см³ и разрешением ~ 3 кэВ на линии 1332 кэВ/ в течение 1 месяца, за который было проведено 13 серий измерений. Обработка полученных γ -спектров осуществлялась по программам ЭПОС-1 /11/ и SIMP3G /12/ соответственно на ЭВМ "Минск-2" и БЭСМ-6.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Анализ результатов обработки γ -спектров показал, что катионообменные смолы содержат кроме изотопов таллия и редкозе-

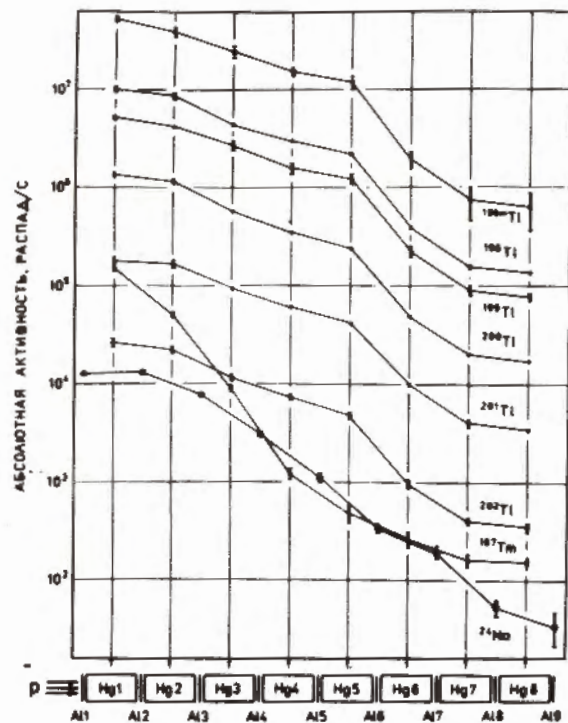


Рис.2. Абсолютные активности некоторых радиоактивных изотопов, образовавшихся при облучении массивной ртутной мишени протонами с энергией 660 МэВ /пояснение в тексте/.

мельных элементов также изотопы щелочных и щелочноземельных элементов и гафния.

На рис.2. представлена схема опыта и даны абсолютные активности, пересчитанные на конец облучения, некоторых изотопов таллия и ^{187}Tm , образовавшихся в массивной ртутной мишени, а также ^{24}Na , образовавшегося в алюминиевых мониторах.

Активность ^{187}Tm характеризует кумулятивный выход этого изотопа, а активность ^{24}Na , кроме того, может быть обусловлена и реакцией $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ на быстрых нейтронах ^{13}C . При определении абсолютных активностей учитывались ошибки определения площадей фотопиков, ошибки пересчета интенсивности γ -излучения на единую геометрию измерений, ошибки принятых коэффициентов самопоглощения γ -лучей в образцах и ошибки используемой зависимости абсолютной эффективности детектора от энергии γ -лучей. Были учтены также ошибки значений абсолютного выхода γ -квантов при распаде определяемых радионуклидов и ошибки их периодов полураспада 14 .

Данные, представленные на рис.2, позволяют отметить постоянство изотопного состава радиоталлия по всей толщине мишени, которое можно охарактеризовать следующими соотношениями активностей некоторых изотопов таллия, образовавшихся в каждом контейнере, а именно: $^{198}\text{Tl}/^{202}\text{Tl} \approx 2000$, $^{198}\text{Tl}/^{200}\text{Tl} \approx 400$, $^{199}\text{Tl}/^{202}\text{Tl} \approx 220$, $^{200}\text{Tl}/^{202}\text{Tl} \approx 50$ и $^{201}\text{Tl}/^{202}\text{Tl} \approx 8,5$. Как и ожидалось, активность радиоталлия в первых пяти контейнерах $/340 \text{ г/см}^2/$ падает примерно в 5 раз, в то время как активность ^{187}Tm , образовавшегося в реакциях глубокого расщепле-

ния, — более чем в 300 раз. Данные рис.2 показывают также, что более 95% наработанных радиоталлия и радиотуллия приходится соответственно на первые 5 и 2 контейнера.

В табл.1 приведены выходы изотопов таллия и ^{187}Tm по длине массивной мишени, отнесенные к интенсивности пучка протонов, входящих в мишень. Интенсивность /ток/ протонов рассчитывалась в предположении, что сечение реакции $^{27}\text{Al}(p, 3p)^{24}\text{Na}$ для $E_p = 660 \text{ МэВ}$ равно 10 ± 1 миллибарн 15 , и составляла $1,65 \times 10^{11} \text{ п/с}$, или 26,4 нА. Суммарные выходы ^{201}Tl , ^{202}Tl и ^{187}Tm на всей массивной мишени составили 3,42; 0,46 и 1,35 мКи/мкА час.

В табл.2 представлены для сравнения рассчитанные выходы указанных выше изотопов, образующихся при облучении различных массивных мишеней протонами с энергией 660 МэВ, а также вес мишеней в предположении, что площадь поперечного сечения пучка протонов составляет 5 см^2 . Для расчета использовались вычисленные по модифицированной в работе 16 формуле Рудстана 17 сечения образования радионуклидов в бесконечно тонких мишенях, а также полученная в работе 18 зависимость эффективного сечения образования радионуклида от толщины мишени. Можно отметить приемлемое согласие рассчитанного по эмпирическим формулам 16,18 и экспериментального выходов ^{187}Tm в массивной ртутной мишени. Данные табл.2 показывают также, что для наработки рассматриваемых изотопов предпочтительнее реакции глубокого расщепления с использованием в качестве материала мишеней Рb и Та. Однако при обработке этих массивных мишеней могут возникнуть серьезные затруднения. Например, в традиционных "мокрых" методах для получения безносительных радионукли-

Таблица 1

Выход некоторых радионуклидов по длине массивной ртутной мишени, мКи/мкА·ч

Радионуклид	Номер контейнера массивной ртутной мишени								Сумма
	1	2	3	4	5	6	7	8	
^{200}Tl	$8,306 \pm 1,049$	$6,991 \pm 0,854$	$3,479 \pm 0,415$	$2,154 \pm 0,256$	$1,442 \pm 0,175$	$0,293 \pm 0,030$	$0,122 \pm 0,014$	$0,105 \pm 0,013$	$22,89 \pm 2,80$
^{201}Tl	$1,088 \pm 0,158$	$1,023 \pm 0,158$	$0,576 \pm 0,068$	$0,373 \pm 0,044$	$0,255 \pm 0,031$	$0,0601 \pm 0,0071$	$0,0248 \pm 0,0034$	$0,0214 \pm 0,0027$	$3,42 \pm 0,45$
^{202}Tl	$0,166 \pm 0,023$	$0,138 \pm 0,018$	$0,070 \pm 0,009$	$0,0453 \pm 0,0060$	$0,0294 \pm 0,0039$	$0,00598 \pm 0,00084$	$0,00251 \pm 0,00035$	$0,00218 \pm 0,00031$	$0,459 \pm 0,061$
^{187}Tm	$0,973 \pm 0,129$	$0,311 \pm 0,041$	$0,0546 \pm 0,0074$	$0,00747 \pm 0,00122$	$0,00302 \pm 0,00072$	$0,00164 \pm 0,00034$	$0,00101 \pm 0,00018$	$0,00096 \pm 0,00018$	$1,35 \pm 0,16$

Таблица 2

Расчитанные 16,18 и экспериментально определенные в настоящей работе выходы некоторых радионуклидов в различных массивных мишенях, облученных протонами с энергией 660 МэВ

Наработка- время радионуклида	Мишень	Кумулятивное сечение образования радионук- лида в бесконечно толстой мишени (б ₀), 10 ⁻²⁷ см ²	Толщина мишени, г/см ²	Эффективное сечение образования радионук- лида для приня- той толщины мишени, б ₀	Выход радионуклида для принятой тол- щины мишени, МКК·час	Масса мишени, г
201 _{Tl}	Bi (расч)	97,2	232	0,542	56,0	1160
	Pb (расч)	89,5	239	0,624	61,7	1195
	Hg (эсп)	-	315 ^{±5}	-	3,25 ^{±0,43}	1575
202 _{Tl}	Bi (расч)	14,3	232	0,574	2,23	1160
	Pb (расч)	13,0	236	0,589	2,13	1180
	Hg (эсп)	-	315 ^{±5}	-	0,44 ^{±0,06}	1575
167 _{Tm}	W (расч)	80,0	222	0,437	13,4	1110
	Ta (расч)	92,1	223	0,462	16,6	1115
	Rg (расч)	15,6	211	0,382	1,98	1055
	Hg (эсп)	-	136 ^{±5}	-	1,28 ^{±0,17}	680

■ - толщина 95%-ного содержания радионуклида, нарабатанного в бесконечно толстой мишени;
■ - для площади поперечного сечения пучка протонов, равной 5 см².

дов требуется однократное использование больших количеств очень чистых веществ, регенерация которых зачастую невозможна в лабораторных условиях; при этом объемы растворов могут достигать нескольких литров. Недеструктивные же высокотемпературные методы, аналогичные используемым на ISOL -установках, либо до сих пор не разработаны, либо очень сложны в аппаратурном оформлении. В то же время очистка 100 мл ртути /1360 г/ перед облучением и полное извлечение из нее изотопов таллия и редкоземельных элементов не представляют труда, что показано в данной работе, так же, как и последующие концентрирование и очистка указанных элементов на ионообменных колонках со сравнительно малым свободным объемом. Следует указать, что окончательная очистка микроколичеств радиоталлия методами ионного обмена значительно облегчена благодаря существованию двух устойчивых в водных растворах валентных форм этого элемента /19/. Представляется естественным многократное использование одной и той же массивной ртутной мишени. Необходимо, однако, еще раз подчеркнуть, что это преимущество массивной ртутной мишени может быть существенным только в случае сравнительно больших поперечных сечений выведенного пучка протонов. При облучении же мишени на внутреннем пучке протонов синхроциклотрона или же на выведенном пучке протонов, когда поперечное сечение пучка составляет несколько мм², предпочтительнее применять в качестве материала мишеней Pb и Ta.

В заключение авторы выражают благодарность проф. К.Я.Гронову и проф. В.А.Халкину за постоянный интерес к данной работе и ряд ценных замечаний, высказанных при ее обсуждении, а также А.М.Озерову и Б.А.Аликову за помощь в осуществлении эксперимента и при обработке результатов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Левин В.И. Получение радиоактивных изотопов. Атомиздат, М., 1972.
2. Краснов Н.Н. и др. Производство изотопов. Атомиздат, М., 1973, с.104.
3. Brien H.A.O., Schillaci M.E. Isotopes and Radiation Technology, 1971, 9, 1, p.105.
4. Richards P., Lebowitz E., Stang L.G. BNL Report IAEA/SM-171/38, 1973.
5. Желепов В.П., Халкин В.А. ОИЯИ, 12-9283, Дубна, 1975.
6. Brien H.A.O. LASL Report LA-4587-MS, p.23, 1972.
7. Громов К.Я. и др. Использование протонных пучков в лучевой терапии, вып. 2. Атомиздат, М., 1979, с.197.

8. Ravn H.L. Phys.Rep. (Review Section of Physics Letters), 1979, 54, 3, p.201.
9. Козловский М.Т. Ртуть и амальгамы в электрохимических методах анализа. "Наука", Алма-Ата, 1956.
10. Козин Л.Ф. Физико-химические основы амальгамной металлургии. "Наука", Алма-Ата, 1964.
11. Адилбиш М. и др. ОИЯИ, 6-10892, Дубна, 1977.
12. Аврамов С.В., Сосновская Е.В., Цупко-Ситников В.М. ОИЯИ, P10-9741, Дубна, 1976.
13. Handbook on Nuclear Activation Cross Sections. Technical Report, Series No.156, IAEA, Vienna, 1974, p.191.
14. Table of Isotopes, Ed. Lederer C.M., Shirley V.S. New York, 1978.
15. Nuclear Data Tables, A6, 4/6, 459-462, 1969.
16. Лаврухина А.К., Кузнецова Р.И. ОИЯИ, 6-4756, Дубна, 1969, с.125.
17. Rudstam G. Z.Naturforsch., 1966, 21a, 7, p.1027.
18. Schillaci M.E. LASL Report MPDOT/MES-1, 1970.
19. Егоров Е.В., Макарова С.Б. Ионный обмен в радиохимии. Атомиздат, М., 1971, с.89 и 329.

Рукопись поступила в издательский отдел
22 апреля 1980 года.