

объединенный
институт
ядерных
исследований
дубна

2113/2-80

P6 - 13024

А.Ф.Новгородов, Г.-Ю.Байер, А.Ковалев,
Ф.Пражак, В.А.Халкин, Ю.В.Юшкевич

БЫСТРОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ ИЗОБАР
НА КОЛЛЕКТОРЕ ISOL -УСТАНОВОК

Направлено в журнал "Радиохимия".

1980

Успех исследований распада короткоживущих радионуклидов в значительной мере определяется быстротой и селективностью методов, которые используются для выделения и разделения элементов^{/1-4/}. Наиболее быстрое получение радионуклидов, удаленных от полосы β -стабильности, осуществляется на ISOL*-установках^{/5/}, работающих в непрерывном режиме на нейтронах из ядерных реакторов или на пучках ускоренных заряженных частиц. Высокотемпературные методы, использующиеся в таких установках, позволяют не только быстро выделять продукты ядерных реакций из мишеней, но и проводить их частичное химическое разделение на всех стадиях получения моноизотопных радиоактивных препаратов, а именно:

а/ в веществе мишени или в улавливателе (catcher) за счет различия в скоростях диффузии или за счет изменения условий, приводящих к образованию тех или иных летучих соединений;

б/ при транспортировке продуктов ядерных реакций от мишени до ионного источника за счет различия в адсорбции или хемсорбции;

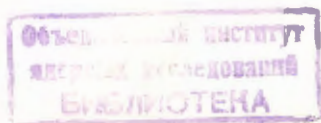
в/ в ионных источниках различного типа за счет изменения условий ионизации атомов или химических соединений;

г/ на коллекторе масс-сепаратора за счет различия в некоторых физико-химических свойствах имплантированных изобар.

Использованию методов, основанных на эффектах, которые указаны в первых трех пунктах, посвящено достаточно большое количество работ, например, ^{/6-16/}, в то же время известны всего лишь две успешных попытки разделения изобар, поступающих на коллектор ISOL -установок. Грапенгиссер и Рудстам^{/17/} описали термосепаратор для выделения изотопов иода, а Хорнске и др.^{/18/} апробировали простой метод разделения Hg-Pt - изобар на нагретых золотых фольгах.

В данной работе была предпринята попытка провести некоторые быстрые химические разделения на коллекторе масс-сепаратора, используя различие в адсорбции элементов на нагретых поверхностях металлов. Основанием для этой попытки явилось обнаруженное нами ранее существенное различие времен жизни некоторых лантанидов на поверхности тантала при высоких температурах^{/19/}. Это различие адсорбционного взаимодействия использовалось нами

* ISOL - Isotope Separator on-line.



для термохроматографического разделения лантанидов в вакууме. Была предложена также система мишень - ионный источник для получения он-лайн изотопов Ва, Eu и Yb^{19/}.

I. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Работа проводилась с радионуклидами, некоторые характеристики распада которых представлены в таблице. Эти нуклиды в состоянии, свободном от носителя, получались при бомбардировке металлических мишеней / Zr, Mo, Hf, Ta и U / протонами с энергией 660 МэВ на синхротронном ускорителе ОИЯИ. Из урановой мишени необходимые для исследования элементы / Ва, La, Ra, Ac и Th / выделялись с использованием анионообменной и катионообменной хроматографии и наносились на танталовую фольгу. Полученные таким образом препараты или облученные фольги тугоплавких металлов / Zr, Hf, Mo, Ta / вводились в ионный источник масс-сепаратора^{21-23/}. Коллектором служили, как правило, несколько металлических танталовых фольг /толщиной 5-15 мкм и размером 40x5 мм каждая/, которые укреплялись таким образом, чтобы ионы различных радиоактивных элементов, ускоренные до энергии 45 кэВ, внедрялись в центральную часть фольг под углом ~30° к их поверхности. Для равномерного распределения исследуемых радионуклидов по всем фольгам пучок ионов многократно перемещался при масс-сепарировании переменным понижением и повышением магнитного поля. После окончания масс-сепарирования коллекторные фольги анализировались на гамма-спектрометре с Ge(Li)-детектором для определения содержания имплантированных в них изотопов.

Обработка гамма-спектров проводилась на ЭВМ "Минск-2" с использованием программ КАТОК^{24/} и ЭПОС-1^{25/}. Ошибка определения содержания имплантированных радионуклидов не превышала 10%. Фольга с известным содержанием радионуклидов укреплялась на специальном штоке, вводилась через шлюз в вакуумную камеру и нагревалась до 1000°-2000°К пропусканием через нее постоянного тока. Вакуум в камере был ~10⁻⁶ Тор. Температура центральной части фольги, содержащей радионуклиды, измерялась микропирометром сравнения через кварцевое окно в стенке камеры. Ошибка определения температуры составляла 20°С. Нагревание продолжалось 180 с, причем температура достигала устойчивого значения через 2-3 с после включения тока. После окончания нагревания шток с фольгой извлекался из камеры и вновь проводился гамма-спектрометрический анализ радиоактивности, оставшейся на фольге.

Таблица

Некоторые характеристики распада радионуклидов^{20/}, которые использовались в исследованиях термической десорбции имплантированных элементов

Радионуклид	Период полураспада	Энергия γ - квантов, кэВ интенсивность, % на распад
⁸³ Rb	83,0 дн.	520,4(47,0), 529,6(30,4), 552,6(16,6)
⁸⁴ Rb	33,0 дн.	881,5(75,3)
⁸² Sr(⁸² Rb) [*]	25,0 дн.	776,8(13,8)
⁸⁵ Sr	64,5 дн.	514,0(99,3)
^{87m} Sr	2,84 дн.	388,4(83,0)
⁸⁶ Y	14,6 час	443,1(16,9), 627,7(32,6), 1076,6(82,5)
⁸⁷ Y	80,0 час	484,7(96,0)
^{87m} Y	14,0 час	381,0(74,0)
⁸⁸ Y	107,0 дн.	898,0(93,0), 1836,1(99,4)
⁸⁶ Zr	16,5 час	243,0(96,1)
⁸⁸ Zr	85,0 дн.	392,8(97,0)
⁸⁹ Zr(^{89m} Y) [*]	78,4 час	909,1(99,0)
¹²⁸ Ba(¹²⁸ Cs) [*]	2,43 дн.	443,2(35,0)
¹³¹ Ba	11,5 дн.	216,0(21,0), 373,2(13,0), 496,3(41,3)
¹⁴⁰ Ba	12,8 дн.	162,9(6,2), 304,8(4,5), 537,4(23,8)
¹⁴⁰ La	40,3 час	328,8(21,3), 487,0(45,7), 815,8(23,6), 1596,2(96,0)
¹⁴⁵ Sm	340,0 дн.	61,4(12,3)
¹⁴⁷ Eu	22,0 дн.	121,2(23,0), 197,4(27,6), 677,6(12,2)
¹⁴⁶ Gd	50,0 дн.	114,8(45,0), 115,6(45,0), 154,7(38,0)
¹⁴⁹ Gd	9,5 дн.	149,0(55,0), 299,0(26,0), 346,0(20,0)
^{166m} Tm	7,7 час	80,6(27,0), 184,4(24,0), 215,8(8,0), 780,0(26,0)
¹⁶⁷ Tm	9,25 дн.	207,8(42,0)
¹⁶⁶ Yb	58,0 час	82,0(17,0)
¹⁶⁹ Yb	31,8 дн.	110,0(18,0), 130,7(11,0), 177,0(22,0), 197,8(40,0), 307,5(10,0)
¹⁶⁹ Lu	34,0 час	191,5(24,0), 960,3(26,0)
¹⁷¹ Lu	8,3 дн.	667,6(15,0), 739,8(68,0)
¹⁷² Lu	6,7 дн.	181,5(21,8), 900,7(31,5), 1093,6(69,7)
¹⁷³ Lu	1,37 год	272,0(26,4)
²²³ Ra(²¹⁹ Rn) [*]	11,4 дн.	144,4(3,2), 154,3(5,6), 269,6(13,6), 324,1(4,0)
²²⁵ Ac(²²¹ Fr, ²¹³ Bi) [*]	10,0 дн.	99,7(2,1), 216,0(1,0), 218,0(12,5), 440,0(26,0)
²²⁷ Th	18,5 дн.	236,0(10,4), 256,2(6,0), 299,8(1,9), 329,7(2,4)

* Идентификация и анализ проводились по гамма-излучению дочерних изотопов, указанных в скобках.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные результаты представлены на *рис.1-6*, в верхней части которых показаны оставшиеся доли /%/ элементов, имплантированных в коллектор, после его нагревания в течение 180 с при заданной температуре, а в нижней части рисунков даны соотношения оставшихся после нагревания долей соответствующих элементов. *Рис.1* показывает, что при нагревании коллекторных фольг из тантала до 1500-1700 К удается очистить препарат изотопов иттрия от изобарных примесей Sr и Rb, причем фактор разделения иттрия и стронция достигает 30. При отсутствии в ионном пучке ионов иттрия может быть произведена очистка изотопов Sr от Rb /1300-1400 К/. Такой способ очистки Y или Sr представляется удобным и полезным, так как при использовании ионного источника поверхностно-ионизационного типа ¹⁰/ионный пучок обогащен легколетучими и хорошо ионизуемыми элементами, например рубидием, и для получения чистых препаратов Y и Sr крайне необходима очистка от него.

Рис.2 демонстрирует возможность очистки изотопов Zr от изобар Y при использовании коллектора из металлического циркония, нагретого выше 1300 К. Фактор разделения может достигать 10³. Следует обратить внимание на то, что использование циркония вместо тантала в качестве коллектора приводит к существенному снижению рабочих температур. Так, температуры 50%-ного удаления иттрия из Ta- и Zr-коллекторов за 180 с равны соответственно 1700 и 1200 К.

Рис.3 и *4* показывают возможность проведения разделений некоторых редкоземельных элементов, что представляет практический интерес для использования совместно с методом получения изобар редкоземельных элементов из танталовой мишени, находящейся непосредственно в ионном источнике поверхностно-ионизационного типа ²²/.

Аналогичным путем может быть достигнута очистка La от Ba /*рис.5*/, а также Th и Ac от Ra /*рис.6*/, причем следует отметить, что Ac и Th ведут себя практически одинаково.

Результаты выполненных исследований послужили основой для разделения короткоживущих ядерных изобар лютеция и иттербия с A=163 и A=165 в ядерно-спектроскопических офф-лайн-экспериментах на пучке протонов синхротронного типа ОИЯИ. Имплантация ионов лантанидов, получаемых по ²²/, проводилась в течение 3-5 мин /время масс-сепарирования/ в нагретую до 1700 К танталовую фольгу. После окончания масс-сепарирования коллекторные фольги извлекались из приемной камеры масс-сепаратора и проводились измерения γ -спектров или спектров конверсионных электронов. Обычно в препаратах, полученных по методике ²²/, крайне трудно исследовать распад изотопов лютеция вследствие

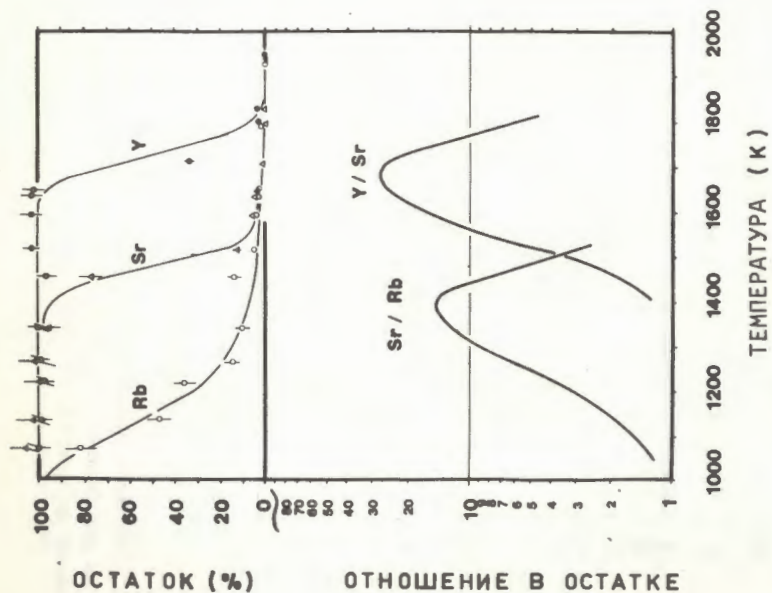


Рис.1. Температурная зависимость улучшения и факторы разделения рубидия, стронция и иттрия. Пояснение в тексте.

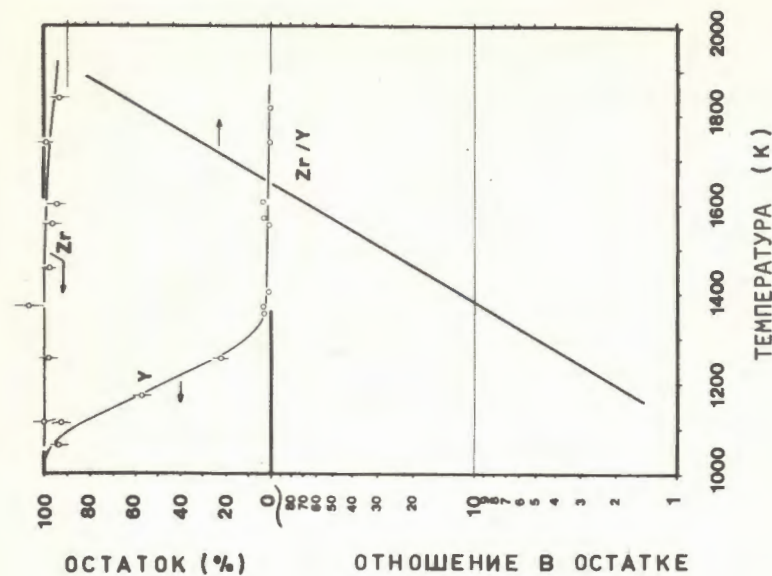


Рис.2. Температурная зависимость улучшения и факторы разделения иттрия и циркония. Пояснение в тексте.

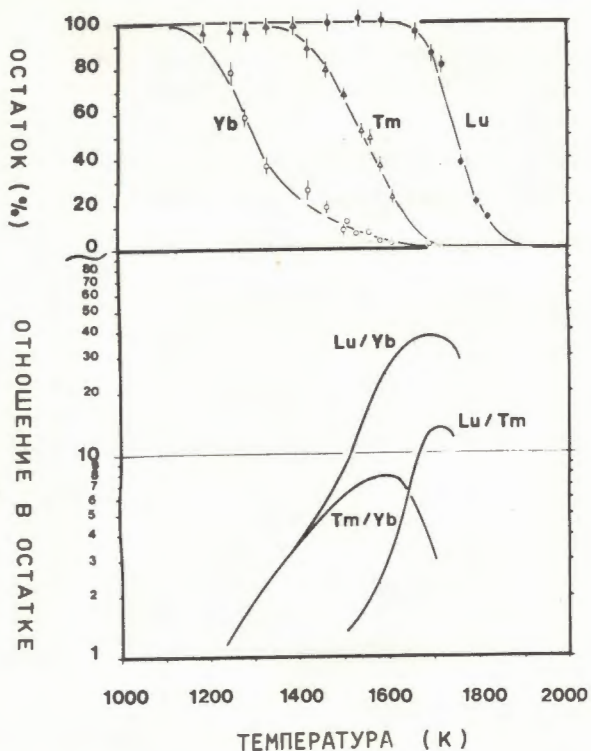


Рис.3. Температурная зависимость улетучивания и факторы разделения тулия, иттербия и лютеция. Пояснение в тексте.

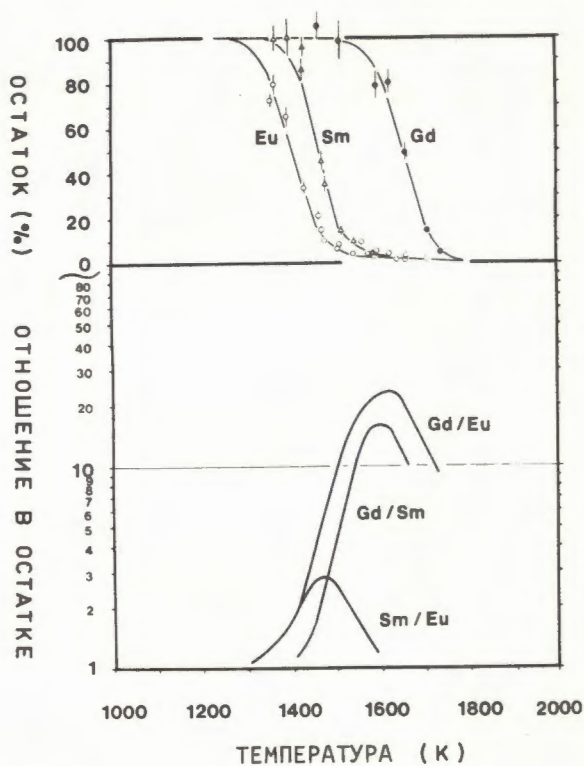


Рис.4. Температурная зависимость улетучивания и факторы разделения самария, европия и гадолиния. Пояснение в тексте.

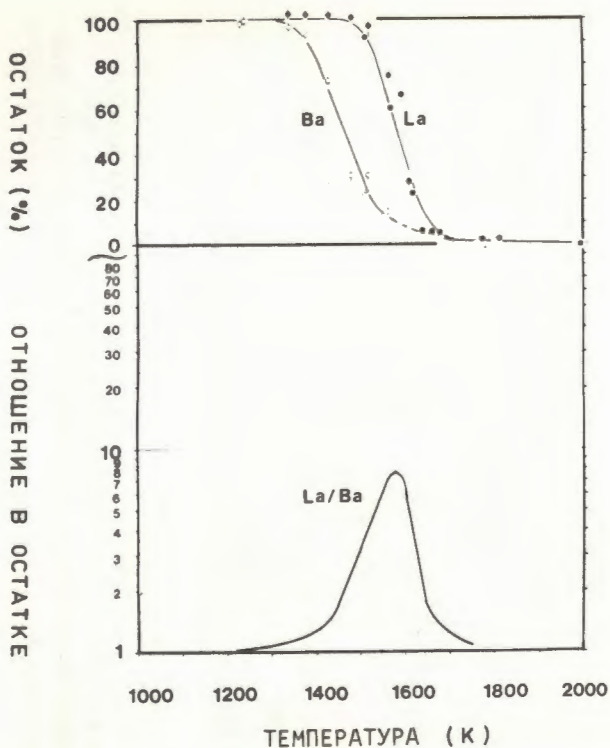


Рис.5. Температурная зависимости улетучивания и факторы разделения бария и лантана. Пояснение в тексте.

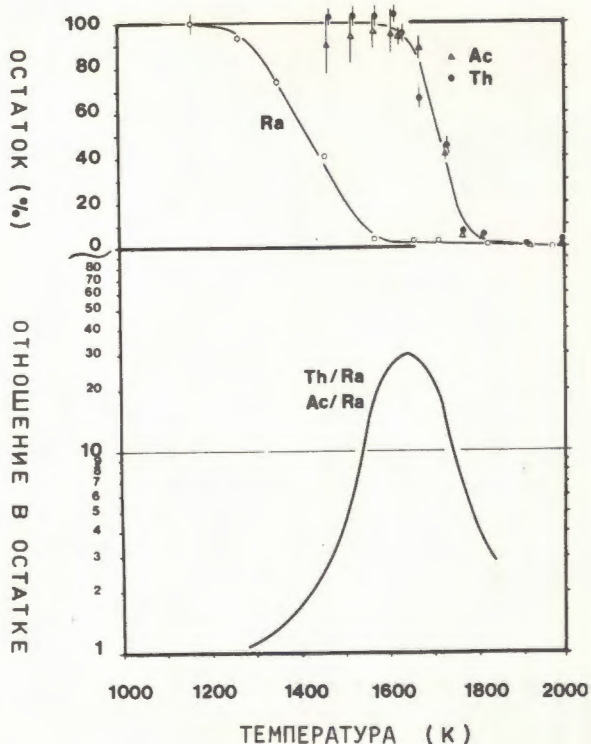


Рис.6. Температурная зависимость улетучивания и факторы разделения радия, актиния и тория. Пояснение в тексте.

того, что содержание изотопов Yb и Tm намного превышает содержание изучаемого изотопа Lu /рис. 7а и 8а/. При использовании же нагретого коллектора получались относительно чистые препараты лютеция /рис. 7б и 8б/. Следует отметить, что измерения из-за необходимости транспортировки источников начинались спустя примерно 5 мин после окончания масс-сепарирования, так что до начала и во время измерений успевали нарасти по цепочкам $^{163}\text{Lu} \xrightarrow{4,1 \text{ мин}} ^{163}\text{Yb} \xrightarrow{11,0 \text{ мин}} ^{163}\text{Tm}$ и $^{165}\text{Lu} \xrightarrow{11,6 \text{ мин}} ^{165}\text{Yb} \xrightarrow{10,5 \text{ мин}} ^{165}\text{Tm}$ дочерние изотопы иттербия. Несмотря на это, при использовании предложенного метода удалось провести успешное исследование распада ряда изотопов лютеция. Приве-

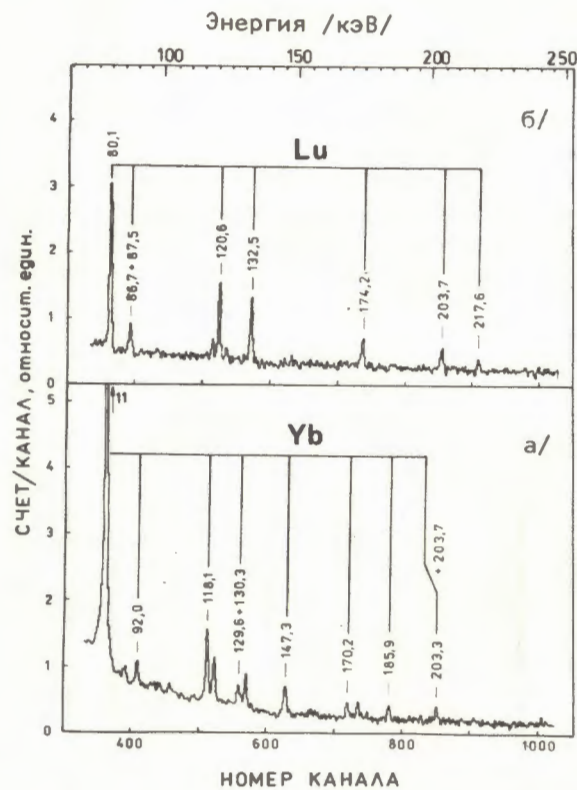
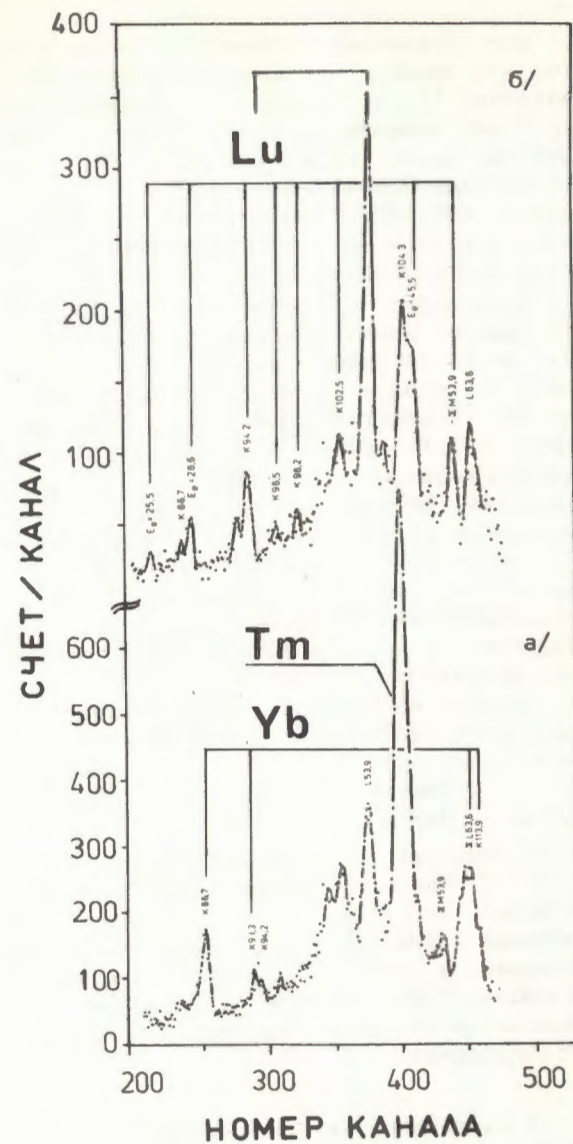


Рис. 7. Гамма-спектры изобар с $A=165$, полученных по методике $^{22}/$ и имплантированных: а - в обычный коллектор из Al-фольги и б - в коллектор из Ta-фольги, нагретой во время масс-сепарирования до 1700 К.

Рис. 8. Спектры конверсионных электронов изобар с $A=163$, полученных по методике $^{22}/$ и имплантированных: а - в обычный коллектор из Al-фольги и б - в коллектор из Ta-фольги, нагретой во время масс-сепарирования до 1700 К.



денные примеры /рис. 7 и 8/ могут иллюстрировать перспективность использования данного метода не только на ISOL-установках, но и на аналогичных установках нового поколения $^{26}/$, с помощью которых получают изобары или еще более сложные смеси радионуклидов.

Все полученные экспериментальные результаты указывают на то, что процесс улетучивания элементов, имплантированных с энергией 45 кэВ, вероятно, в большей степени определяется десорбцией, нежели диффузией. Это особенно четко видно из *рис.1*. Действительно, из данных работы^{/27/}, посвященной изучению диффузии ряда элементов в тантале, следует, что в области температур 1000-1700 К доли оставшихся в тантале элементов Y, Sr и Rb, рассчитанные по экстраполированным коэффициентам диффузии, должны соотноситься между собой как 1:400:100, что явно не коррелирует с данными *рис.1*. С другой стороны, процесс улетучивания имплантированных элементов не может рассматриваться как чисто десорбционный, в противном случае можно было бы ожидать согласно работе^{/19/} соотношения остатков Lu/Yb около 10^5 . В действительности это отношение достигает только 40 /*рис.3*/. Естественно, что при изменении энергии имплантации вклады диффузии и десорбции в процесс улетучивания будут изменяться. Следует напомнить, что средняя глубина проникновения ионов с энергией 45 кэВ в тантал составляет для Sr^+ и Yb^+ /с учетом того, что имплантация проводилась под углом $\sim 30^\circ$ к поверхности/ соответственно 90 и 35Å /^{28/}. Уменьшение энергии имплантированных ионов до единиц или десятых долей кэВ даст возможность изучать таким методом процесс десорбции в более чистом виде.

Необходимо подчеркнуть неожиданное для нас практически полное улетучивание при 1900 К имплантированных в тантал иттрия и лютеция /*рис.1* и *3*/. По данным нашей более ранней работы^{/19/} при этой температуре указанные элементы имеют средние времена жизни на тантале около 10^4 с и практически не должны были бы улетучиваться за время экспериментов в данном исследовании /180 с/. Наиболее правдоподобным объяснением этого эффекта следует, вероятно, считать различие химических форм редкоземельных элементов, с которыми проводились сравниваемые исследования; в частности, реально предположить, что этими формами в работе^{/19/} были окислы, а в данном случае - атомы элементов. Выяснению этого вопроса предполагается посвятить последующие исследования.

В заключение авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность В.И.Соболеву, А.М.Озерову, М.Яхиму, В.М.Горожанкину и Г.Ю.Коровину за помощь, оказанную при выполнении данной работы, а также Р.Усманову и З.Гонсу за предоставление гамма-спектров и спектров конверсионных электронов изобар с $A=163$ и 165 .

ЛИТЕРАТУРА

- Herrmann G., Denschlag H.O. Ann.Rev.Nucl.Sci., 1969, 19, p.1.
- Bächmann K. Proc. Int. Conf. On Electromagn. Isotope Separators and Techniques of their Appl., BMBW-FB K70-28, Marburg, 1970, p.126.
- Trautmann N. Proc. 3rd Int. Conf. on Nuclei far from Stability. CERN 76-13, Geneva, 1976, p.30.
- Meyer R.A. UCRL-81069, Livermore, California, May 1979.
- Ravn H.L. Proc. 3rd Int. Conf. in Nuclei far from Stability, CERN 76-13, Geneva, 1976, p.22.
- Talbert W.L. Proc. Int. Conf. on the Properties of Nuclei far from the Region of Beta-Stability. CERN, 70-30, Geneva, 1970, v.1, p.109.
- Beyer G.-J., Novgorodov A.F. Radiochem. Radioanal. Lett., 1978, 27, 5/6, p.341.
- Адилбиш М. и др. "Радиохимия", 1978, 20, 5, с.761.
- Beyer G.-J. et al. ZfK-307, Rossendorf, 1976.
- Beyer G.-J. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1978, 148, 3, p.543.
- Steiner J. Jahresbericht 1974 Inst. für Kernchemie, Univ. Mainz, 1975, S37.
- Steiner J., Weber M. Jahresbericht 1975 Int. für Kernchemie, Univ. Mainz, 1976, S.25.
- Kirchner R., Roeckl E., Weber M. Proc. Mett. Target Techniques for On-Line Isotope Separators, Aarhus, Denmark, 1975.
- Roeckl E. et al. Proc. 8th Intern. EMIS Conf., Skovde, Sweden, 1973, p.324.
- Piotrowski A. et al. Proc. 8th Intern. EMIS Conf., Skovde Sweden, 1976, p.346.
- Burkard K.H. et al. Jahresbericht 1974 Inst. für Kernchemie, Univ. Mainz, 1975, S.122.
- Grapengiesser B., Rudstam G. Radiochim. Acta, 1973, 20, 1/2, p.85.
- Hornshoj P. et al. Proc. 8th Intern. EMIS Conf., Skovde, Sweden, 1973, p.379.
- Байер Г.-Ю., Новгородов А.Ф., Халкин В.А. "Радиохимия", 1978, 20,4, с.589.
- Erdtmann G., Soyka W. Die γ -Linien der Radionuklide. Jül-1003-AG, Jülich, April 1974.
- Beyer G.-J. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1971, 96, 3, p.437.
- Arlt R. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1972, 102, 2, p.253.

Все полученные экспериментальные результаты указывают на то, что процесс улетучивания элементов, имплантированных с энергией 45 кэВ, вероятно, в большей степени определяется десорбцией, нежели диффузией. Это особенно четко видно из *рис.1*. Действительно, из данных работы^{/27/}, посвященной изучению диффузии ряда элементов в тантале, следует, что в области температур 1000-1700 К доли оставшихся в тантале элементов Y, Sr и Rb, рассчитанные по экстраполированным коэффициентам диффузии, должны соотноситься между собой как 1:400:100, что явно не коррелирует с данными *рис.1*. С другой стороны, процесс улетучивания имплантированных элементов не может рассматриваться как чисто десорбционный, в противном случае можно было бы ожидать согласно работе^{/19/} соотношения остатков Lu/Yb около 10^5 . В действительности это отношение достигает только 40 /*рис.3/*. Естественно, что при изменении энергии имплантации вклады диффузии и десорбции в процесс улетучивания будут изменяться. Следует напомнить, что средняя глубина проникновения ионов с энергией 45 кэВ в тантал составляет для Sr^+ и Yb^+ /с учетом того, что имплантация проводилась под углом $\sim 30^\circ$ к поверхности/ соответственно 90 и 35Å /^{28/}. Уменьшение энергии имплантированных ионов до единиц или десятых долей кэВ даст возможность изучать таким методом процесс десорбции в более чистом виде.

Необходимо подчеркнуть неожиданное для нас практически полное улетучивание при 1900 К имплантированных в тантал иттрия и лютеция /*рис.1* и *3/*. По данным нашей более ранней работы^{/19/} при этой температуре указанные элементы имеют средние времена жизни на тантале около 10^4 с и практически не должны были бы улетучиваться за время экспериментов в данном исследовании /180 с/. Наиболее правдоподобным объяснением этого эффекта следует, вероятно, считать различие химических форм редкоземельных элементов, с которыми проводились сравниваемые исследования; в частности, реально предположить, что этими формами в работе^{/19/} были окислы, а в данном случае - атомы элементов. Выяснению этого вопроса предполагается посвятить последующие исследования.

В заключение авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность В.И.Соболеву, А.М.Озерову, М.Яхиму, В.М.Горожанкину и Г.Ю.Коровину за помощь, оказанную при выполнении данной работы, а также Р.Усманову и З.Гонсу за предоставление гамма-спектров и спектров конверсионных электронов изобар с $A=163$ и 165 .

ЛИТЕРАТУРА

- Herrmann G., Denschlag H.O. Ann.Rev.Nucl.Sci., 1969, 19, p.1.
- Bächmann K. Proc. Int. Conf. On Electromagn. Isotope Separators and Techniques of their Appl., BMBW-FB K70-28, Marburg, 1970, p.126.
- Trautmann N. Proc. 3rd Int. Conf. on Nuclei far from Stability. CERN 76-13, Geneva, 1976, p.30.
- Meyer R.A. UCRL-81069, Livermore, California, May 1979.
- Ravn H.L. Proc. 3rd Int. Conf. in Nuclei far from Stability, CERN 76-13, Geneva, 1976, p.22.
- Talbert W.L. Proc. Int. Conf. on the Properties of Nuclei far from the Region of Beta-Stability. CERN, 70-30, Geneva, 1970, v.1, p.109.
- Beyer G.-J., Novgorodov A.F. Radiochem. Radioanal. Lett., 1978, 27, 5/6, p.341.
- Адилбиш М. и др. "Радиохимия", 1978, 20, 5, с.761.
- Beyer G.-J. et al. ZfK-307, Rossendorf, 1976.
- Beyer G.-J. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1978, 148, 3, p.543.
- Steiner J. Jahresbericht 1974 Inst. für Kernchemie, Univ. Mainz, 1975, S37.
- Steiner J., Weber M. Jahresbericht 1975 Int. für Kernchemie, Univ. Mainz, 1976, S.25.
- Kirchner R., Roeckl E., Weber M. Proc. Mett. Target Techniques for On-Line Isotope Separators, Aarhus, Denmark, 1975.
- Roeckl E. et al. Proc. 8th Intern. EMIS Conf., Skovde, Sweden, 1973, p.324.
- Piotrowski A. et al. Proc. 8th Intern. EMIS Conf., Skovde Sweden, 1976, p.346.
- Burkard K.H. et al. Jahresbericht 1974 Inst. für Kernchemie, Univ. Mainz, 1975, S.122.
- Grapengiesser B., Rudstam G. Radiochim. Acta, 1973, 20, 1/2, p.85.
- Hornshoj P. et al. Proc. 8th Intern. EMIS Conf., Skovde, Sweden, 1973, p.379.
- Байер Г.-Ю., Новгородов А.Ф., Халкин В.А. "Радиохимия", 1978, 20,4, с.589.
- Erdtmann G., Soyka W. Die γ -Linien der Radionuklide. Jül-1003-AG, Jülich, April 1974.
- Beyer G.-J. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1971, 96, 3, p.437.
- Arlt R. et al. Nucl.Instr. and Meth., 1972, 102, 2, p.253.

23. Latuszynski A. et al. Nucl. Instr. and Meth., 1974, 120, 2, p.321.
24. Гаджоков В. ПТЭ, 1970, №5, с.82.
25. Адилбиш М. и др. ОИЯИ, 6-10892, Дубна, 1977.
26. Armbruster P. Proc. 3rd Intern. Conf. on Nuclei far from Stability. CERN 76-13, Geneva, 1976, p.3.
27. Beyer G.-J-. Fromm W.-D., Novgorodov A.F. Nucl. Instr. and Meth., 1977, 146, 2, p.419.
28. Nielsen R.O. Electromagnetically Enriched Isotopes and Mass Spectrometry. Ed. M.L.Smith. Acad. Press, N.Y., 1956, p.68.

Рукопись поступила в издательский отдел
25 декабря 1979 года.