

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P6-85-201

А. Ф. Новгородов

МАССИВНЫЕ МИШЕНИ
МНОГОКРАТНОГО ИСПОЛЬЗОВАНИЯ
ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ СПАЛОГЕННЫХ
РАДИОНУКЛИДОВ

Направлено на IV Всесоюзный семинар
"Программа экспериментальных исследований
на мезонной фабрике ИЯИ АН СССР", Москва

1985

ВВЕДЕНИЕ

Изучение ядер, удаленных от линии стабильности /как нейтронодефицитных, так и нейтроноизбыточных/, наиболее успешно проводится на ускорителях промежуточных энергий /300 МэВ-2 ГэВ/¹⁻⁴. Работающие на таких ускорителях ISOL-установки (Isotope Separator on-line) позволяют получать в настоящее время моноизотопные пучки ионов почти 60 элементов Периодической системы, причем интенсивность этих пучков в наиболее благоприятных случаях достигает 10-15 нА на 1 мкА первичного пучка ускоренных частиц, а периоды полураспада многих экзотических радионуклидов /например, ¹¹Li и ³⁴Na/ составляют всего несколько миллисекунд. Вместе с тем в связи с бурным развитием ядерной медицины наметилось еще одно перспективное направление использования пучков частиц промежуточных энергий - наработка в промышленном масштабе сравнительно долгоживущих ценных радионуклидов⁵⁻⁷. Например, мезонной фабрикой Лос-Аламоса за 1983 год поставлялось в различные научные центры и клиники 15 радиоизотопов /в том числе ¹²⁷Xe, ⁸²Sr, ⁶⁷Cu, ⁷⁷Br, ¹²³I и ⁶⁸Ge/ общей активностью 35 Ки⁸.

Частицы средних энергий обладают значительным пробегом /несколько сотен граммов на см²/, поэтому стремление полнее использовать их пучки приводит к необходимости облучать мишени большой массы, выделение из которых микроколичеств спалогенных продуктов представляет трудную задачу. Наиболее успешно она может быть решена путем применения методов, позволяющих проводить выделение образующихся радионуклидов без изменения химической формы материала мишени, т.е. использовать мишени многократно. К настоящему времени накоплен достаточно большой опыт быстрого высокотемпературного вакуумного выделение продуктов ядерных реакций из расплавленных или порошкообразных массивных мишеней^{9,10}. Эти продукты, однако, являются, как правило, изотопами относительно легколетучих элементов. Что касается труднолетучих элементов переходных рядов Периодической системы, то они могут быть быстро выделены в газовую фазу только в виде химических соединений при соответствующем подборе материала мишени и контейнера, состава и давления газа-реагента, а также температуры, что иногда исключает использование ионных источников, работающих в условиях глубокого вакуума.

Следует отметить, что многократное использование мишеней практиковалось в препаративной радиохимии на реакторах и ускорителях низкой энергии уже давно, например, при получении три-

тия из сплава лития с магнием, ^{11}C из окиси бора, ^{18}N из активированного угля или ^{131}I из окиси теллура 11 . Эти методы применялись для относительно малых количеств материала мишеней. При облучении же частицами средних энергий масса мишеней может достигать килограммовых количеств, так что с учетом чистоты и стоимости материала, а также требуемой высокой удельной активности получаемого препарата, многократность /и надежность/ использования мишеней становится необходимостью.

В настоящей работе кратко рассматриваются массивные мишени многократного использования /МММИ/ для получения радионуклидов на пучках частиц /в основном - протонов/ средних энергий. Значительный успех, достигнутый в этой области на ISOL-установках при получении короткоживущих удаленных от полосы стабильности ядер, представляется нам хорошим фундаментом для развития методов выделения радионуклидов, имеющих большое значение для прикладных исследований, и прежде всего для ядерной медицины.

МИШЕНИ ISOL-УСТАНОВОК

Под общей эффективностью этих мишеней, работающих в условиях вакуума непрерывно или многократно в течение сотен часов, понимают совокупность трех составляющих: выхода, скорости и селективности выделения продуктов ядерных реакций. История развития мишениной техники на ISOL-установках ознаменована постоянным стремлением к идеальной мишени, которая обеспечивала бы высокий выход короткоживущих радиоизотопов одного выбранного элемента. Пройденный путь можно грубо разделить на три этапа: твердые мишени - порошки стеаратов и оксидов 12,13 , жидкие мишени - расплавы металлов и химических соединений 14 и вновь твердые тела - тонкие фольги и мелкодисперсные порошки тугоплавких металлов, карбидов, оксидов, силицидов и т.д. $^{15-18}$. К началу 80 гг. были разработаны и широко использовались высокоэффективные мишени, дающие возможность получать моноизотопные пучки радиоактивных ионов галогенидов, благородных газов, щелочных, щелочноземельных и редкоземельных элементов.

В настоящее время, которое можно считать четвертым этапом развития мишеней ISOL-установок, усилия многих исследователей направлены на расширение номенклатуры выделяемых элементов. В первую очередь речь идет о получении моноизотопных радиоактивных ионов тугоплавких переходных элементов, таких, как Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd и их аналогов /легких и тяжелых/. Первые работы в этом направлении были выполнены нами в 1975-76 гг. 19 ; в них была показана возможность выделения изотопов осмия и рения из мишеней в газовую фазу, содержащую O_2 или H_2O при их пониженных давлениях. Логическое продолжение этих работ с использованием четырехфтористого углерода позволило выделить и масс-сепарировать короткоживущие изотопы гафния и тантала с пе-

риодами полураспада около 10 с^{20} . Основываясь на обзоре 21 , посвященном "off-line"-исследованиям выделения многих элементов в газовую фазу, содержащую различные фторирующие агенты при пониженных давлениях / - $0,1\text{ Па}$ /, из порошков металлов и карбидов, следует ожидать, что в ближайшем будущем на ISOL-установках станут доступными пучки ионов короткоживущих изотопов практически всех элементов Периодической системы. При этом, вероятно, возникает проблема селективности.

Рис.1. Элементы, моноизотопные радиоактивные ионы которых могут быть получены на установке ISOLDE-2 22 .

Ситуация к середине 1984 года на установке ISOLDE-2 22 , являющейся авангардом ISOL-систем, представлена на рис.1, где показаны элементы, радиоактивные моноизотопные пучки ионов которых могут быть получены с достаточно хорошей эффективностью. Данные таблицы конкретизируют эту ситуацию. Следует подчеркнуть, что интерес к ISOL-установкам в мире растет - практически на всех ускорителях типа мезонных фабрик работают или будут созданы подобные установки. Перспективность их в научных и прикладных исследованиях связана с возможностью:

- наработки экзотических радионуклидов, которые могут быть использованы как мишени;
 - ускорения радиоактивных ионов;
 - изучения ядер, близких к границам протонной и нейтронной устойчивости;
 - получения радионуклидов для медицинского использования.
- Последняя возможность уже реализована на установке ISOLDE-2, где за 2 ч, используя массивную мишень из порошка ниобия, можно получить генератор $^{81}\text{Rb} \xrightarrow{4,6\text{ ч}} ^{81\text{m}}\text{Kr} \xrightarrow{13\text{ с}}$ активностью около 50 мКи 23 . Предлагается получать также еще два ценных для ядерной медицины радионуклида - ^{123}I и ^{77}Br .

МИШЕНИ ДЛЯ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ВЫДЕЛЕНИЯ СПАЛОГЕННЫХ ПРОДУКТОВ

Анализ данных показывает, что большинство систем мишень - ионный источник на установке ISOLDE-2 работает с общей эффективностью не выше 10%, причем нужно учесть, что толщина мише-

Таблица. Ионные пучки установки ISOLDE-2 и их интенсивности, отнесенные к 1 мкА первичного пучка протонов с энергией 600 МэВ.

Ион	Мишень (г/см ²)	Массовое число иона (ион/с)	период полураспада
1	2	3	
He	Та-фольга (I22)	6(7·10 ⁵)	0,8 с.
Li	U-карбид (I3)	7(8·10 ⁹)	ст.; II(1,4·10 ³)8,7 мс; 8(5,8·10 ⁷)0,8 с.
	Та-фольга (I22)	8(4·10 ⁸)	0,84 с; 9(3,6·10 ⁷)0,17 с.
	Ir-порш. (2)	8(2·10 ⁶)	0,84 с; II(1,1·10 ²)8,7 мс; 9(10 ⁶)0,17 с.
C	CaO(6,5)	II(4,8·10 ⁵)	20 м; I6(4·10 ³)0,7 с; IO(2·10 ⁴)19 с.
	N	CaO(6,5)	I3(2,4·10 ⁴)10 м; I6(8,2·10 ²)7 с.
Ne	Та-фольга (I22)	23(4,1·10 ⁵)	37 с; 24(2·10 ⁵)3,4 м.
	Na	U-карбид (I3)	25(6,4·10 ⁶)
Ir-порш. (24)		25(6,4·10 ⁵)	I м; 3I(36)17 мс; 28(3·10 ³)31 мс.
Та-фольга (I22)		25(3,7·10 ⁷)	I м; 30(I20)53 мс; 29(2,7·10 ³)0,3 с.
Mg	Та-фольга (I22)	29(1,5·10 ⁴)	I,1 с; 27(8,5·10 ⁵)9,5 м.
	Sc-карбид (3,2)	23(3·10 ⁴)	II с; 22(710)4 с.
Al	Та-фольга (I22)	29(2,1·10 ⁶)	6,6 м; 30(7000)3,6 с; 23(1,2·10 ⁵)0,4 с.
	U-карбид (I3)	29(2,1·10 ⁶)	6,6 м; 30(7000)3,6 с.
Si	U-карбид (I3)	38(5·10 ⁵)	37 м; 43(390)3 с; 40(1,2·10 ⁵)1,4 м.
	ThO ₂ (47)	38(2·10 ⁶)	37 м; 42(280)7 с; 40(1,6·10 ⁵)1,4 м.
	Та-карбид (92)	38(2,6·10 ⁶)	37 м; 43(380)3 с; 34(3,2·10 ⁴)32 м.
	Та-порш. (41)	38(6,3·10 ⁶)	37 м; 43(560)3 с; 33(1,4·10 ²)2,5 с.
	Nb-порш. (22)		
Ar	CaO(6,5)	35(8,8·10 ⁶)	2с; 32(500)75 мс; 34(5,4·10 ⁵)0,8 с.
	V-карбид (38)	37(4,5·10 ⁸)	35д; 32(0,2)75 мс; 46(900)8 с.
	S-карбид (10,3)	35(4·10 ⁵)	2 с; 33(18)175 мс; 34(2·10 ⁴)0,8 с.
Ca	борид (4,9)	35(6·10 ⁵)	2 с; 32(2)75 мс; 34(3·10 ⁴)0,8 с.
	K	U-карбид (I3)	43(2,4·10 ⁷)
Та-фольга (I22)		42,43(5·10 ⁷)	22,12ч; 38(1,5·10 ⁴)7,6 м; 48(10 ⁵)6,8с
Ir-порш. (24)		47(2,2·10 ⁴)	17 с; 38(710)7,6 м; 49(480)1 с.
Sc-карбид (3,2)		42(1,4·10 ⁹)	12 ч; 135(158)190мс; 38(7,9·10 ⁷)7,6 м.

Таблица. (продолжение)

1	2	3
Ca	Та-порш. (I23)	49(8·10 ⁵)8,7 м; 50(2,5·10 ⁵)14 м; 5I(10 ⁴)10 с.
	U-карбид (I3)	49(2,5·10 ⁵)8,7 м; 52(100)
	Sc-карбид (3,2)	39(7,9·10 ³)860 мс.
Sc	U-карбид (I3)	52(I3)8 с.
Tl	U-карбид (I3)	52(II3)49 м.
V	U-карбид (I3)	52(I700)3,8 м.
Zn	Ge-жидк. (I34)	65(10 ¹⁰)244 д.
Ga	U-карбид (I5)	76(8,3·10 ⁶)27 с; 8I(7·10 ⁴)1,2 с; 78(2,3·10 ⁶)5,5 с.
	Br	Nb-порш. (85)
U-карбид (I3)		83(1,7·10 ⁸)2,4 ч; 76(1,8·10 ⁴)1,4 с; 94(48)
Та-карбид (92)		78(2,5·10 ⁷)6,5 м; 73(2,8·10 ⁴)3,3 м; 86(10 ⁵)54 с.
Kr	Nb-порш. (50)	79(10 ⁹)39 ч; 7I(450)97 мс; 8Im(5·10 ⁸)13 с.
Rb	Nb-порш. (50)	8I(2·10 ¹⁰)4,5 ч; 74(10 ³)65 мс; 87(5,6·10 ⁸)ст.
	Та-фольга (I22)	9I(1,5·10 ⁶)58 с.
	U-карбид (I3)	90(5·10 ⁸)2,6 м; 79(3,6·10 ⁵)23 м; IO2(250)
Sr	U-карбид (I3)	IOO(II00)50 мс.
Y	U-карбид (I3)	IOO(II00)0,6 с.
Pd	U-карбид (I3)	II5(1,8·10 ⁵)38 с.
Ag	U-карбид (I3)	II4(5·10 ⁵)4,5 с; II0(7900)25 с.
cd	Sn-жидк. (I20)	IO8(5,6·10 ⁸)ст; 97(I)3 с; I22(2,5·10 ⁵)5,5 с.
In	U-карбид (I3)	II9(10 ⁹)2,3 м; III(3,5·10 ⁵)2,8 д; I33(II00)0,18 с.
Sn	TeCl ₄ (6)	II3(2·10 ⁹)II5 д; IO7(2·10 ⁷)1,3 м; III(7·10 ⁸)35 м.
I	La-жидк. (I20)	I20(1,3·10 ⁸)1,4 ч; II5(2,5·10 ⁴)1,3 м; I28(2·10 ⁶)25м
	Та-порш. (41)	I22(4·10 ⁶)3,6 м; II5(8·10 ⁴)1,3 м; II6(5·10 ⁴)2,9 с.
	Nb-порш. (22)	
	ThO ₂ (47)	I28(8·10 ⁷)25 м; II6(2,8·10 ³)2,9 с; I42(2300)0,2 с.
	BaZnO ₃ (I9)	I23(8·10 ⁷)13 ч; II4(10)2 с; I34(4,5·10 ⁴)52 м.
Xe	La-карбид (7,3)	I27(5,2·10 ⁸)36 д; II3(6)3 с; I33(3·10 ⁶)5,3 д.
Cs	La-жидк. (I40)	I27(1,3·10 ¹¹)6,2 ч; II4(8,4)0,6 с; I27(2·10 ⁹)30 л.
	Та-фольга (I22)	I30(3,7·10 ⁷)29 м; II6(1000)0,7 с; I2I(3,2·10 ⁴)23 м.

Таблица, (продолжение)

I	2	3
Ва	La-жидк. (I20)	I34, I36(5,6·10 ¹⁰)ст; I22(7,9·10 ⁷) II 7 с.
	U-карбид (I5)	I36(7,3·10 ⁸)ст; I46(1,9·10 ⁵) 2,2 с; I34(7·10 ⁸)ст.
Fr	U-карбид (I3)	I42(10 ⁷) I9 ч.
Na	U-карбид (I3)	I47(5,4·10 ⁶) II д.
Рm	U-карбид (I3)	I51(2,1·10 ⁶) 28 ч; I49(4,3·10 ⁵) 53 ч; I50(10 ⁵) 2,7 ч.
	Ta-фольга (I22)	I35(6·10 ⁶) 0,8 м.
Eu	U-карбид (I3)	I56(1,3·10 ⁶) I5,2 д; I52(8,3·10 ⁴) I3 л.
	Gd жидк. (29) La	I46(5,3·10 ⁸) 4,5 д; I39(7·10 ⁵) 22 с; I54(2·10 ⁸) 8,2 л.
	Ta-фольга (I22)	I44(5,6·10 ⁸) I0 с; I42(2·10 ⁸) 2,4 с; I43(4·10 ⁸) 2,6 м.
Tb	Ta-фольга (I22)	I47(4·10 ⁸) I,7 ч; I45(1,7·10 ⁷) 30 с; I46(8,4·10 ⁷) 23 с.
Dy	Ta-фольга (I22)	I51(5,9·10 ⁹) I7 м; I49(10 ⁹) 4,1 м.
Ho	Ta-фольга (I22)	I58(2,8·10 ¹⁰) II м; I51(10 ⁸) 36 с; I70(1,3·10 ⁸) 2,8 м.
Er	Ta-фольга (I22)	I55(1,2·10 ⁹) 5,3 м; I50(7·10 ⁶) 20 с; I60(4·10 ⁸) 29 ч.
Tm	Ta-фольга (I22)	I58(1,2·10 ⁹) 4 м; I53(10 ⁷) I,6 с; I55(4·10 ⁸) 25 с.
Yb	Ta-порош. (I30)	I66(1,6·10 ¹⁰) 57 ч; I53(2,5·10 ⁴) 4 с.
	Ta-фольга (I22)	I77(8,3·10 ⁷) I,9 ч.
	Ta-фольга (I22)	I65(3·10 ¹⁰) I0 м; I55(8·10 ⁶) I,6 с; I67(10 ¹⁰) I7,7 м.
Lu	Ta-фольга (I22)	I66(3,9·10 ⁹) 2,7 м; I57(10 ⁷) 5,5 с; I68(7,9·10 ⁸) 5,5 м.
Hg	Pb-жидк. (I70)	I94(7·10 ⁹) 367 л; I77(0,89) I70 мс.
		205(6,3·10 ⁷) 5,2 м.
TI	Th-карбид (I3)	I97(1,4·10 ⁶) 2,8 ч; I85(5,6·10 ⁴) I,8 с.
		I99(10 ⁶) 7,4 ч.
	Th-карбид (55)	I95(5,5·10 ⁶) 3,6 с; I88(1,9·10 ⁶) I,2 м.
		207(5·10 ⁷) 4,8 м.
Рo	Th-фторид (30)	I98(2,5·10 ⁵) I,8 м; I95(65) 4,5 с; I96(1,9·10 ³) 5,5 с.
At	ThO ₂	2II(7·10 ⁶) 7 ч; 200(1,3·10 ⁵) 42 с; 223(100)
Rn	ThO ₂ (40)	2I0(3·10 ⁸) 2,5 ч; I99(7,1) 0,5 с; 266(2200) 6 м.
Fr	U-карбид (I3)	2I2(1,6·10 ⁸) 20 м; 20I(I) 48 мс; 230(5600)
	Th-карбид (55)	224(4,7·10 ⁹) 3,3 м; 203(2,1·10 ⁵) 0,55 с.
		228(4,2·10 ⁸) 39 с.
Ва	U-карбид (I3)	224(6·10 ⁸) 3,7 д; 208(2,5·10 ⁴) I,4 с; 232(5,6·10 ⁴)

ней в среднем составляет 10-100 г/см². Последнее вызвано прежде всего желанием достичь высоких скоростей выделения короткоживущих радионуклидов - в лучших случаях эти скорости характеризуются периодами полувыделения, равными 25-30 с. Если же задачу несколько изменить и ориентироваться на получение сравнительно долгоживущих радионуклидов медицинского назначения, то во многих случаях можно существенно повысить выход этих радионуклидов, исключая ионный источник и заменяя его просто ловушкой или термохроматографической колонкой /ТХК/ из подходящего материала^{24/}. Так как эффективность ионизации большинства продуктов ядерных реакций составляет 10-50% выход интересующих нас радионуклидов может быть повышен в 2-10 раз. При этом можно увеличить массу мишеней и значительно снизить температуру, что повысит надежность работы МММИ в режиме "on-line".

Умело используя цепочки распада радионуклидов, можно получать препараты медицинского назначения с допустимыми радиоизотопными загрязнениями. В качестве примера реализации такого подхода рассмотрим возможность получения тулия-167 при использовании массивной мишени из тантала и вакуумной ТХК^{25/}. Как можно видеть из рис.2, где представлена термохроматограмма Lu, Yb и Tm на танталовой колонке в вакууме, зоны их значительно отличаются по температурам, что дает возможность получать в "on-line" - режиме ¹⁶⁷Tm, практически не содержащий наиболее опасную примесь - ¹⁶⁸Tm, из фракций радиоизотопов лютеция и иттербия. Соотношение независимых сечений образования в танталовой мишени изобар с A=167 показывает, что потеря ¹⁶⁷Tm во фракции этого элемента составит всего около 10%, а общий выход этого нуклида должен возрасти за счет отказа от ионного источника в 10 раз^{26/}. Температура мишени может быть снижена на 300-400 К. Это приведет к увеличению периода полувыделения иттербия с 0,5 до 5,0 мин, что, однако, существенно не скажется на выходе ¹⁶⁷Tm^{27/}.

Используя вакуумную термохроматографию и мишени ISOL-установок, но уже в "off-line"-режиме, можно достаточно просто получать значительные количества материнских генераторных радионуклидов, так как в этом случае

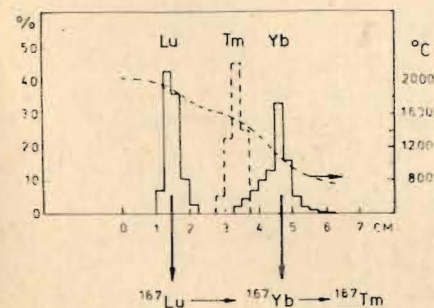
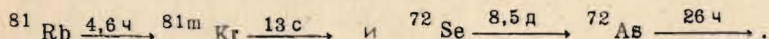
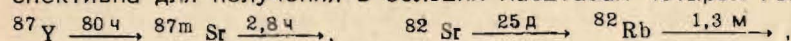


Рис.2. Термохроматограмма микроколичеств редкоземельных элементов в открытой трубчатой танталовой колонке диаметром 3 мм и принцип получения радиохимически чистого ¹⁶⁷Tm^{25/}.

нет жестких требований /кроме биологической защиты/ к радиоизотопной чистоте препарата. Например, МММИ из порошка ниобия - одна из наиболее разработанных мишеней на установке ISOLDE-2, перспективна для получения в больших масштабах четырех генераторов:



Материалом ТХК может служить не только тантал, но и другие тугоплавкие металлы. За кратковременный период облучения нарабатываются первый и третий генераторы, при длительных облучениях можно получать материал для второго и четвертого генераторов.

Отказ от ионных источников позволяет работать как в "on-line", так и в "off-line"-режимах с газами-носителями или газами-реагентами при нормальных давлениях, что расширяет номенклатуру получаемых радионуклидов. Практически нет элемента, радиоактивные изотопы которого нельзя было бы получать этим способом ²⁸; вопрос, как правило, состоит в радиоизотопной чистоте получаемых препаратов. Используя мишень хлорида серебра и последующее его плавление в токе хлористого водорода, хлора, кислорода и их смесей ²⁹⁻³¹, можно получить радиоактивные изотопы циркония, ниобия, молибдена, технеция и рутения, разделяя их летучие соединения на кварцевой ТХК. Примесь ¹⁰³Ru в препарате ⁹⁷Ru, получаемом таким способом, не превышает 0,3%, а химический выход за несколько часов достигает 95% при использовании мишени массой в 1 кг.

Пористая никелевая мишень, как показали недавние эксперименты, может многократно служить для получения некоторых ценных радионуклидов, в том числе ⁵²Fe /³²/. Рис.3 представляет термохроматограмму хлоридов спалогенных продуктов, которые были выделены за 3 ч из 7 г пористого /20-40 мкм/ никеля в газовую фазу, содержащую смесь H₂ + HCl/1:3/. Нежелательное испарение материала мишени составляет около 0,2%, но, как видно из рисунка, зона его осаждения на кварцевой ТХК оканчивается при 1000 К, т.е. значительно выше температурной области, где расположены зоны адсорбции спалогенных продуктов. Эта мишень может быть использована также для получения долгоживущих радионуклидов, таких, как ⁵¹Cr и ⁴⁴Ti.

"On-line"-использование мишени из расплавленного золота с одновременным пропусканием кислорода в качестве газа-реагента ³³ будет приводить к выделению в основном изотопов рения и осмия, из зон адсорбции которых на кварцевой ТХК можно получать мате-

риал для перспективного генератора ¹⁷⁸W $\xrightarrow{22\text{ д}}$ ¹⁷⁸Ta $\xrightarrow{9,2\text{ м}}$. Следует отметить, что аналогичная техника с использованием расплавленных мишеней и различных газов-носителей уже давно и широко применяется для "on-line"-получения ¹²³I и ⁷⁷Br. Однако вершиной

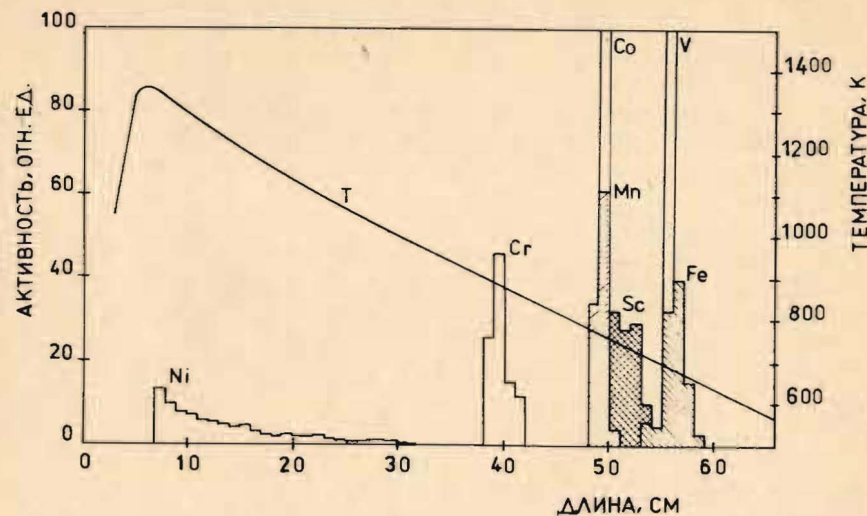


Рис.3. Термохроматограмма хлоридов некоторых спалогенных продуктов, выделяющихся из пористой никелевой мишени в газовую фазу H₂ + HCl/1:3/, в открытой трубчатой кварцевой колонке диаметром 1,25 мм ³².

в этой области МММИ, хотя и в "off-line"-режиме работы, до сих пор является эксперимент Дэвиса ³⁴ по регистрации солнечных нейтрино, в котором масса мишени составляет 615 т, а скорость образования ³⁷Ar, эффективность выделения которого близка 95%, составляет всего лишь 0,4 ядра в сутки. В настоящее время проектируется аналогичная установка с массой мишени в 3000 т ³⁵.

МИШЕНИ ДЛЯ ВЫДЕЛЕНИЯ СПАЛОГЕННЫХ ПРОДУКТОВ ВОДНЫМИ МЕТОДАМИ

Опыт использования высокотемпературных способов выделения и разделения продуктов ядерных реакций пока что не может сравниться с богатым опытом классической водной радиохимии, особенно тогда, когда не требуются высокие скорости выделения короткоживущих радионуклидов. Отметим, что почти все радиоактивные изотопы медицинского назначения, получаемые методами водной химии на Лос-Аламосской мезонной фабрике ⁸, выделялись из массивных мишеней, представляющих собой, как правило, металлы. Трудности, связанные с такими способами, описаны в работе ³⁶, посвященной выделению и разделению р.з.э., которые образовывались в танталовой мишени массой в 700 г.

В различное время предлагались МММИ в виде гетерогенных смесей - большей частью - в виде суспензий ¹¹. Термическая

и радиационная стойкость таких мишеней невысока, что ограничивает их использование на пучках ускоренных частиц высокой интенсивности. На наш взгляд, наиболее подходящим материалом для МММИ могут служить легкоплавкие металлы и сплавы, извлечение из которых спалогенных продуктов в подходящий водный раствор можно проводить при температурах, несколько ниже температуры кипения водной фазы.

В 1980 г. нами была предложена МММИ из металлической ртути, извлечение из которой радиоактивных щелочных, щелочноземельных, редкоземельных элементов и таллия в разбавленную уксусную кислоту при 70–80°C близко к количественному³⁷. Соотношение ртутной и водной фаз составляет 4:1, время извлечения – 1,5 ч. Последующее концентрирование указанных спалогенных продуктов легко осуществляется сорбцией их на сульфокатионите из полученного уксуснокислого раствора. Рис. 4 показывает распределение активности некоторых радионуклидов вдоль массивной мишени, которая составлялась из восьми контейнеров внутренним диаметром 20 и длиной 50 мм, заполненных ртутью. Интенсивность первичного пучка протонов с энергией 660 МэВ была равна 26,4 нА, а время облучения составляло 600 с. Суммарные выходы ²⁰¹Tl, ²⁰²Tl и ¹⁶⁷Tm во всей ртутной МММИ равны 3,42; 0,46; 1,35 мКи/ч. Учитывая простоту радиохимической обработки, эту мишень планируется использовать для получения ¹⁶⁷Tm на фазотроне ОИЯИ.

Предварительные аналогичные исследования, проведенные с МММИ из металлического галлия, указывают на возможность количественного и быстрого извлечения в уксуснокислый раствор ⁵²Fe и ⁶²Zn

–материнских генераторных изотопов ⁵²Mn ($T_{1/2} = 21$ м) и ⁶²Cu ($T_{1/2} = 9,8$ м), являющихся перспективными радионуклидами для эмиссионной позитронной томографии. Следует отметить повышенный интерес к этой МММИ в связи с предложением использовать ее для регистрации солнечных нейтрино³⁸. В ближайшем будущем планируется создание двух

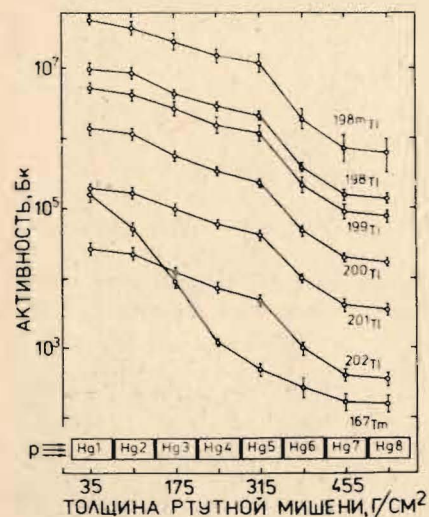


Рис. 4. Распределение абсолютных активностей некоторых радионуклидов по толщине ртутной мишени, облученной протонами с энергией 660 МэВ / $I_p = 26,4$ нА, $t = 600$ с.³⁷

детекторов массой 50 тонн³⁵. Предложено несколько методов выделения ⁷¹Ge^{39–41}, скорость образования которого в этих детекторах составит около 1 ядра в сутки. Наибольший интерес с нашей точки зрения представляет способ выделения ⁷¹Ge в водную фазу, содержащую перекисы водорода, – заманчивым путем получения из галлиевой МММИ генераторного ⁶⁸Ge³⁹.

Подводя итоги данного краткого обзора, следует в первую очередь подчеркнуть перспективность МММИ, разрабатываемых для ISOL-установок. Вместе с тем мы пытались показать, что эта техника мишеней с некоторыми изменениями может успешно использоваться и для получения радионуклидов медицинского назначения, спрос на которые в последние годы неуклонно растет.

ЛИТЕРАТУРА

1. Carraz L.C. In: "Nuclear Spectroscopy of Fission Products." Conf. Ser.No.51. Inst.Phys.Bristol and London, 1980, p.36.
2. A.Workshop on the ISOLDE Programme. Abstracts,Zinal, Switzerland, June 18–22, 1984.
3. Langevin M. et al. Proc. of the 7th Intern.Conf. on Atomic Masses and Fundamental Constants AMCO-7,Darmstadt,1984, p.36.
4. Ahmad S.A. et.al. Там же, p.341.
5. O'Brien H.A. et al. Prog.Nucl.Med.,1978,4, p.93.
6. Grant P.M. et al. J.Lab.Comp.Radiopharm., 1979, 16, 1, p.212.
7. Burgerjon J.J. et al. Trans.Am.Nucl.Soc., 1979, 33, p.921.
8. Peterson E.K. et al. LAMPE Annual Report FY 1983, LA-10130, 1984, p.82.
9. Ravn H.L. et al. Proc. of the 8th Intern. EMIS Conf. Skowde Sweden, 1973, p.432.
10. Ravn H.L. Phys. Rep. 1979, 54, 3, p.203.
11. Левин В.И. Получение радиоактивных изотопов. Атомиздат, М., 1972.
12. Patzelt P.Proc.Conf. on EMIS and the Techniques of Their Appl. Marburg, 1970, p.158.
13. Hansen F. et al. Proc. of the 8th Intern.EMIS Conf. Skowde, Sweden, 1973, p.426.
14. Ravn H.L. et al. NIM, 1975, 123, 1, p.131.
15. Beyer G.-J., Novgorodov A.F. ZfK-303, Rossendorf, 1976.
16. Ravn. H.L. et al. NIM, 1976, 139, p.267.
17. Beyer G.-J. et al. NIM, 1977, 146, 2, p.419.
18. Beyer G.-J., Novgorodov A.F. ZfK-305, Rossendorf, 1976.
19. Адилбиш и др. ОИЯИ, P12-10584, Дубна, 1977.
20. Liang C.F. et al. Proc. of the 4th Intern.Conf. on Nuclei far from Stability. Geneva, 1981, p.709.
21. Hoff P. et al. NIM, 1984, 221, p.313.

22. Ravn. H.L. Workshop on the ISOLDE Programme. Abstracts, Zinal, Switzerland, June 18-22, 1984, p.D9.
23. Bayer G.-J. et al. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1984, 35, 11, p.1075.
24. Rossbach H., Eichler B. ZfK-527, Rossendorf, 1984.
25. Байер Г.-Ю. и др. Радиохимия, 1978, 20, 4, с.589.
26. Latuszynski A., Raiko V.I. JINR, E13-8361, Dubna, 1974.
27. Carraz L.C. et al. NIM, 1978, 148, 2, p.217.
28. Herrmann G., Denschlag H.O. Ann. Rev. of Nucl. Sci., 1969, 19, p.1.
29. Баяр Б. и др. Радиохимия, 1974, 16, 3, с.343.
30. Баяр Б. и др. Радиохимия, 1978, 20, 1, с.82.
31. Баяр Б. и др. Радиохимия, 1978, 20, 5, с.749.
32. Новгородов А.Ф. и др. ОИЯИ, P6-85-41, Дубна, 1985.
33. Баяр Б. и др. Радиохимия, 1974, 16, 3, с.329.
34. Devis R. et al. Phys. Rev. Lett. 1968, 20, p.1205.
35. Zatsepin G. Neutrino-82. Supplement, Budapest, 1982, p.53.
36. Thomas K.E. Radiochim. Acta., 1983, 34, 3, p.135.
37. Новгородов А.Ф. и др. ОИЯИ, 6-80-308, Дубна, 1980.
38. Кузьмин В.А. ЖЭТФ, 1965, 49, 5/11/, с.1532.
39. Rowley J.K. et al. Neutrino-77. "Nauka", Moscow, 1978, vol.1, p.15.
40. Barabanov I.R. et al. Там же, p.20.
41. Hampel W. Neutrino-84. Darmstadt, 1984, p.530.

Рукопись поступила в издательский отдел
21 марта 1985 года.

Новгородов А.Ф.

Массивные мишени многократного использования
для получения спалогенных радионуклидов

P6-85-201

На основе опыта использования массивных мишеней ISOL-установок, предназначенных для получения короткоживущих спалогенных продуктов, предлагаются методы высокотемпературного выделения из таких мишеней некоторых радионуклидов, ценных для прикладных исследований, и прежде всего, - для ядерной медицины. Рассматриваются также две массивные мишени - ртутная и галлиевая, которые могут быть использованы для выделения спалогенных продуктов методами классической водной химии.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1985

Перевод М.И.Потапова

Novgorodov A.F.

Massive re-Usable Targets for Production
of Spallation Radionuclides

P-6-85-201

The experience in the use of massive targets at ISOL facilities designed for production of short-lived spallation products being studied, some methods are proposed for high-temperature separation of some radionuclides from targets of that type; the radionuclides in question are of importance for investigations in applied sciences, first of all in nuclear medicine. Two massive targets of mercury and gallium are also considered; they can be employed separation of spallation products by methods of classical water chemistry.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1985