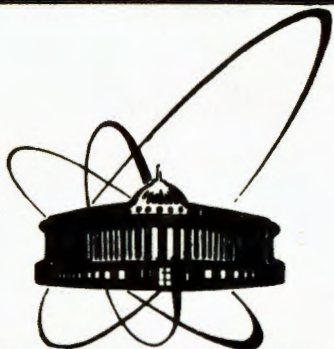


С 4138



ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

P6-85-918

А.Ф.Новгородов, А.Г.Белов, А.Зелински,  
А.Колачковски

ПРОСТОЙ МЕТОД  
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ВЫДЕЛЕНИЯ  $^{111}\text{In}$   
ИЗ МАССИВНОЙ ОЛОВЯННОЙ МИШЕНИ

Направлено в журнал "Радиохимия"

1985

СИБИРЬ

## ВВЕДЕНИЕ

Из различных путей получения широко применяемого в ядерной медицине радионуклида  $^{111}\text{In}$  /1/ до последнего времени детально не рассматривался фотоядерный способ с использованием в качестве материала мишени обогащенного изотопа  $^{112}\text{Sn}$ , хотя уже давно в ряде работ /2,3/ была показана перспективность этого пути. Недавно А.Б.Малининым и др. /4/ проведено экспериментальное определение выхода  $^{111}\text{In}$  при облучении обогащенного металлического  $^{112}\text{Sn}$  гамма-квантами с энергией 25 МэВ, который оказался равным  $17,3$  мКи/мкА.час.г  $^{112}\text{Sn}$ ; загрязнение полученного препарата  $^{111}\text{In}$  долгоживущим  $^{114\text{m}}\text{In}$  составляло менее  $10^{-3}\%$ . Вместе с тем предложенный в этой работе метод выделения индия из облученного олова обладает, на наш взгляд, недостатком - необходимостью использовать большие объемы исходного раствора, из которого ведется извлечение материала мишени - олова.

Так как наработка больших количеств  $^{111}\text{In}$  на микротронах возможна при облучении мишеней массой 10 г и более, желательны использовать мишени многократно, не прибегая к их растворению и исключая потери материала мишени. Аналогичная задача решается при создании мишеней для ISOL-установок (Isotope Separator On-Line), успешно использующихся в настоящее время для исследования короткоживущих, удаленных от полосы бета-стабильности радионуклидов. Массивная мишень многократного использования /ММИ/ из олова уже давно применялась на одной из таких установок /5/ для получения короткоживущих изотопов кадмия. И хотя температура расплава олова достигала  $1375$  К, а скорость испарения материала мишени при этой температуре в вакууме уже очень высока /около  $100$  мг/см<sup>2</sup>.час/, выход изотопов индия оставался незначительным. Более удачной оказалась ММИ в виде расплава  $\text{SnO}_2 + \text{V}_2\text{O}_5$  из которой при  $975$  К в токе кислорода быстро извлекались в газовую фазу микроколичества серебра, кадмия и индия /6/. Широкого использования на ISOL-установках эта мишень, однако, не нашла, вероятно, из-за необходимости создания значительного давления кислорода / $>1$  Па/, мешающего нормальной работе ионного источника. Принципиально этот метод может использоваться для выделения  $^{111}\text{In}$  из мишени, содержащей  $^{112}\text{Sn}$ , хотя для коммерческого производства на микротронах кажется нежелательным уменьшение выхода  $^{111}\text{In}$  за счет применения в качестве материала мишени не чистого металла, а химического соединения, имеющего кроме того меньший удельный вес. В связи с этим в данной работе проведено исследование



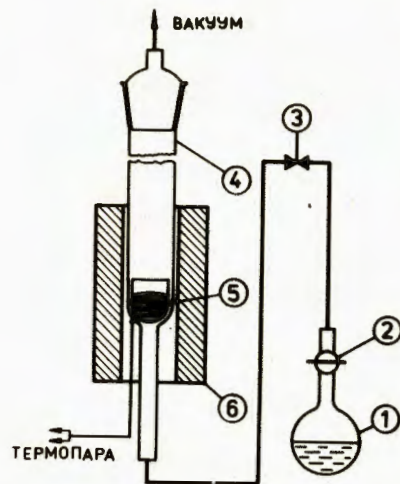
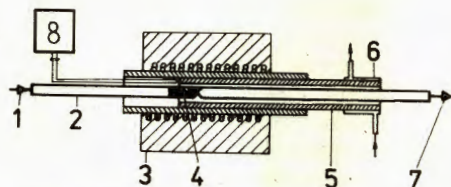


Рис.1. Схема аппаратуры для изучения высокотемпературного выделения  $^{111}\text{In}$  из облученного олова: 1 — реакгент; 2 — кран; 3 — игольчатый вентиль; 4 — кварцевая труба; 5 — облученное олово в кварцевом тигле; 6 — печь.

Рис.2. Схема аппаратуры для изучения термохроматографического поведения летучих соединений индия: 1 — газ-реакгент; 2 — ТХК; 3 — печь; 4 — облученное олово; 5 — металлическая трубка для создания плавного изменения температуры вдоль ТХК; 6 — холодильник; 7 — к вакуумному диффузионному насосу.



высокотемпературного выделения изотопов индия из расплава металлического олова в газовую фазу, содержащую различные газы-реактенты при их пониженном  $\sim 0,1$  Па/ давлении. Перспективность использования таких условий для выделения радионуклидов из ММИ была показана в работах <sup>7,8/</sup>, причем в последней из них было найдено, что низкие давления  $\leq 0,1$  Па/ фторирующих газов  $\text{CF}_4$ ,  $\text{SF}_6$  и др./ существенно увеличивают скорости выделения из мишени некоторых элементов, а термические данные указывают на повышенную летучесть монофторида индия <sup>9/</sup>.

#### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе использовалось металлическое олово /99,99%/, которое облучалось на синхротронном и синхрофазотроне ОИЯИ протонами с энергией 700 МэВ и 8 ГэВ соответственно или  $\gamma$ -квантами с энергией 21 МэВ на микротроне ЛЯР ОИЯИ. Кварцевая аппаратура, в которой проводилось исследование высокотемпературного выделения радиоактивных изотопов индия, представлена схемой на рис.1. На рис.2 показано расположение в электропечи кварцевой

термохроматографической колонки /ТХК/, в которой изучалось распределение летучих соединений индия, выделяющихся из облученного олова. Газами-реактентами служили пары воды,  $\text{C}_6\text{F}_6$ , соляной и плавиковой кислот, а также воздух, которые подавались в аппаратуру через игольчатый вентиль для создания постоянного давления в пределах  $0,1-4,0$  Па. Оценка давления газов-реактентов осуществлялась манометром ВИТ-2 с датчиком ПМТ-2 по градуировочной кривой для воздуха. Начальный вакуум в аппаратуре до напуска газов-реактентов составлял  $\sim 5 \cdot 10^{-3}$  Па. Нагрев обеспечивался электропечами сопротивления, причем время достижения заданной температуры в пределах 1175-1375 К составляло 10-20 мин. Определение выделения  $^{111}\text{In}$  из облученных образцов олова и распределения микроколичеств индия в ТХК проводилось  $\gamma$ -спектрометрически с ошибками не более 5%.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В табл.1. представлены условия проведения и результаты опытов по выделению  $^{111}\text{In}$  в газовую фазу из образцов облученного металлического олова массой около 0,5 г, выдержанных при  $1225 \pm 10$  К в течение 1 часа. Там же приведены величины, характеризующие испарение самого олова — материала мишени. Видно, что наилучшие результаты получены при использовании фторирующих газов-реактентов. Интересно отметить, что улетучивание олова в газовую фазу, содержащую пары  $\text{HF}$ , на порядок величины меньше, чем в вакууме. Учитывая их доступность и тот факт, что продукты пиролиза  $\text{C}_6\text{F}_6$  могут быть опасны для работы ионного источника ISOL-установок, мы остановили свой выбор фторирующего агента на парах  $\text{HF}$ , генератором которых служила в наших опытах концентрированная плавиковая кислота.

Таблица 1

Испарение материала мишени — олова и выделение  $^{111}\text{In}$  в газовую фазу за 1 час при  $1225 \pm 10$  К. Масса металлического олова 0,5 г.

Газовая фаза /проток/	Испарение олова, %	Выделение $^{111}\text{In}$ , %
Вакуум $\sim 5 \cdot 10^{-3}$ Па	$0,58 \pm 0,06$	$5,2 \pm 2,1$
Пары $\text{H}_2\text{O}$ $\sim 1$ Па	$0,22 \pm 0,02$	$12,3 \pm 1,5$
Воздух $\sim 1$ Па	$5,1 \pm 0,5$	$22,0 \pm 2,4$
Пары $\text{C}_6\text{F}_6$ $\sim 1$ Па	$0,04 \pm 0,01$	$66,4 \pm 3,3$
Пары $\text{HCl} + \text{H}_2\text{O}$ /10:1/ $\sim 1$ Па	$1,96 \pm 0,20$	$93,7 \pm 2,7$
Пары $\text{HF} + \text{H}_2\text{O}$ /1:1/ $\sim 1$ Па	$0,05 \pm 0,01$	$97,5 \pm 2,7$



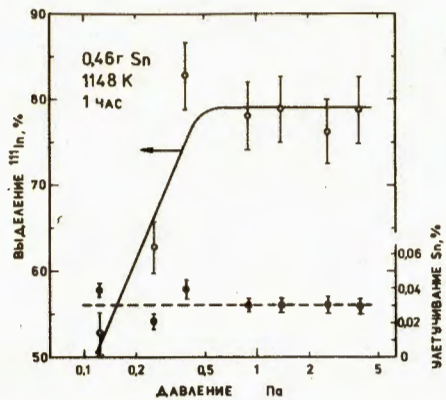


Рис.4. Температурные зависимости выделения  $^{111}\text{In}$  и испарения материала мишени - олова. Давление паров  $\text{HF} + \text{H}_2\text{O}$  - 0,4 Па.

Рис.3. Зависимости выделения  $^{111}\text{In}$  и испарения материала мишени - олова от давления паров  $\text{HF} + \text{H}_2\text{O}$ .

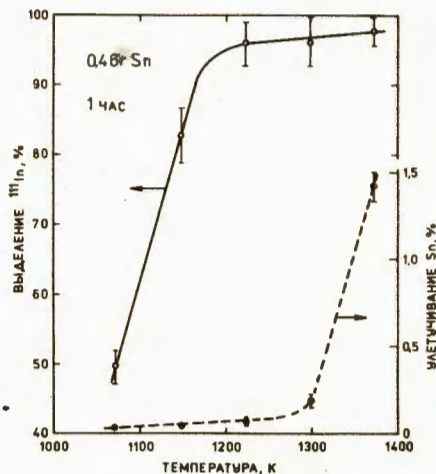


Рис.3 и 4 показывают зависимости выделения  $^{111}\text{In}$  в газовую фазу и улетучивания материала мишени - олова от давления паров  $\text{HF}$  и температуры соответственно. Видно, что выделение  $^{111}\text{In}$  при оптимальных условиях /0,4 Па, 1225 К/ составляет ~95%. Термохроматограмма летучих соединений ультрамикроколичеств индия, приведенная на рис.5, и уменьшение улетучивания материала мишени в среде фторирующих газов могут служить основой создания МММИ для получения короткоживущих изотопов индия на ISOL-установках. В то же время, учитывая то, что микроколичества индия, адсорбированные в кварцевой ТХК при температуре  $350 \pm 50$  К /см. рис.5/, легко смываются теплым 0,1 М раствором соляной кислоты, металлическое олово можно предложить как МММИ для получения  $^{111}\text{In}$ . При этом возникает проблема выбора ядерных реакций, приводящих к образованию в облучаемом олове  $^{111}\text{In}$  высокой радионуклидной чистоты. К сожалению, как показывают наши эксперименты, облучения природного олова протонами с энергией 65 МэВ, 700 МэВ и 8 ГэВ приводят к образованию суммы изотопов индия, содержащей значительные количества долгоживущего  $^{114\text{m}}\text{In}$  /соответственно 2,6%, 3,3% и 3,9% относительно  $^{111}\text{In}$  /, так что предлагаемый метод получения  $^{111}\text{In}$  из металлического олова может быть реализован только при использовании обогащенного  $^{112}\text{Sn}$  в качестве материала мишени. Наиболее доступными путями наработки  $^{111}\text{In}$  в этом случае являются ядерные реакции  $(p,2n)$  и  $(\gamma,n)$ .

Проведенное нами облучение образца природного олова массой 10 г гамма-квантами с энергией 21 МэВ на микротроне в непосредственной близости от вольфрамового конвертера <sup>9/</sup> привело к образованию  $^{111}\text{In}$ , содержащего около 0,3%  $^{114\text{m}}\text{In}$ , с выходом

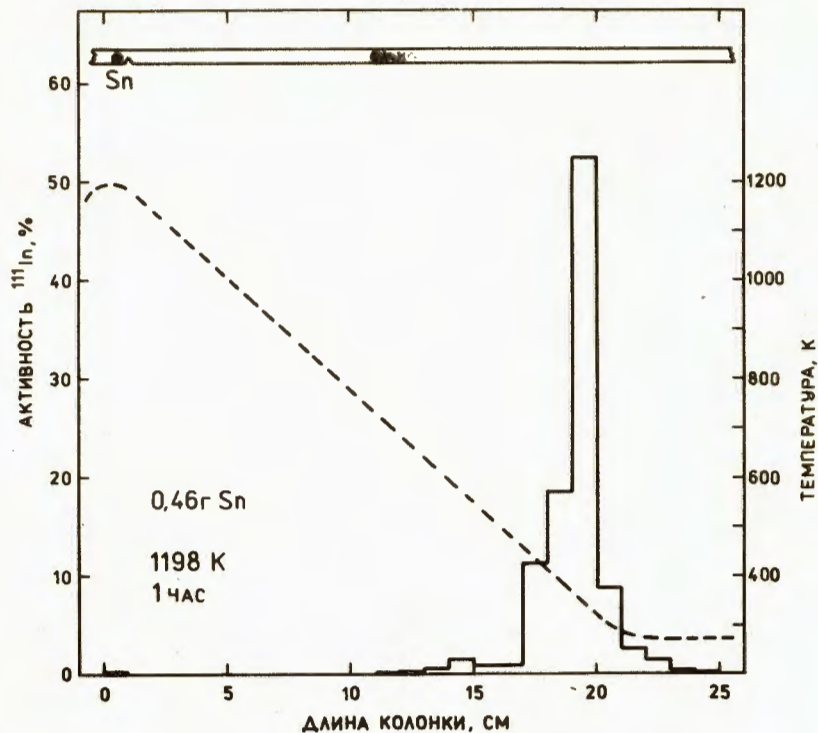


Рис.5. Термохроматограмма летучих соединений индия, выделенных из олова в газовую фазу, содержащую пары  $\text{HF} + \text{H}_2\text{O}$  при давлении 0,4 Па.

0,185 мкКи/мкА·час·г природного  $\text{Sn}$  на конец 3-часового облучения, что хорошо согласуется с данными А.Б.Малинина и др. <sup>4/</sup>. С учетом возможности широкого использования предлагаемого нами метода была изучена зависимость выделения  $^{111}\text{In}$  из больших количеств олова, облученного протонами с энергией 700 МэВ. Данные представлены в табл.2. Окончательное отделение  $^{111}\text{In}$  от 20-50 мг олова не представляет труда и может быть успешно проведено, с использованием, например, анионообменной <sup>11/</sup> или распределительной <sup>12/</sup> хроматографии.

Таким образом, в данной работе найдены условия многократного использования массивной мишени из металлического олова, обогащенного изотопом  $^{112}\text{Sn}$ , для получения  $^{111}\text{In}$ . Результаты данной работы могут служить также основой создания мишени для ISOL-установок, предназначенной для получения короткоживущих, удаленных от линии стабильности изотопов индия. Реализация последней возможности позволит идентифицировать летучее соединение, в форме



Таблица 2

Выделение  $^{111}\text{In}$  из массивных оловянных мишеней.  
Температура  $1225 \pm 10$  К, давление паров  $\text{HF} + \text{H}_2\text{O}$  -  
 $0,4$  Па, время -  $\frac{1}{2}$  часа.

Масса мишени, г	Выделение $^{111}\text{In}$ , %	Улетучивание олова, %	Время выделения 95% $^{111}\text{In}$ , час*
10,1	94,3 $\pm$ 1,2	0,08 $\pm$ 0,02	2,1
19,6	71,7 $\pm$ 3,4	0,05 $\pm$ 0,02	4,1
29,5	49,5 $\pm$ 2,6	0,04 $\pm$ 0,01	8,8
38,5	45,0 $\pm$ 2,7	0,04 $\pm$ 0,01	10,0
49,0	31,9 $\pm$ 1,5	0,03 $\pm$ 0,01	15,6

\* - расчет.

которого микроколичества индия транспортируются в низкотемпературную область кварцевой ТХК.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Левин В.И. Получение радиоактивных изотопов. Атомиздат, М., 1972, с.183.
2. Goryachev B.I. Atom energy rev., 1964, 2, p.71.
3. Levin V.I. et al. Radiochem. Radioanal. Lett., 1981, 49, p.111.
4. Malinin A.B. et al. Radiochem. Radioanal. Lett., 1983, 59, p.213.
5. Ravn. H.L. et al. Proc. of the 8<sup>th</sup> Intern. EMIS Conf., Skovde, Sweden, 1973, p.432.
6. Wolf G.K. GSI-Bericht 71-1, Darmstadt, 1971, p.123.
7. Адилбиш и др. Радиохимия, 1980, 22, с.763.
8. Hoff P. et al. NIM, 1984, 221, p.313.
9. Верятин У.Д. и др. Термодинамические свойства неорганических веществ. Атомиздат, М., 1965, с.74.
10. Белов А.Г. и др. ОИЯИ, Р9-82-301, Дубна, 1982.
11. Егоров Е.В., Макарова С.Б. Ионный обмен в радиохимии. Атомиздат, М., 1971, с.356.
12. Гуреев Е.С. и др. Радиохимия, 1974, 16, с.286.

Рукопись поступила в издательский отдел  
20 декабря 1985 года.

## НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги,  
если они не были заказаны ранее.

Д17-81-758	Труды II Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1981.	5 р. 40 к.
Р18-82-117	Труды IV совещания по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. Дубна, 1981.	3 р. 80 к.
Д2-82-568	Труды совещания по исследованиям в области релятивистской ядерной физики. Дубна, 1982.	1 р. 75 к.
Д9-82-664	Труды совещания по коллективным методам ускорения. Дубна, 1982.	3 р. 30 к.
Д3,4-82-704	Труды IV Международной школы по нейтронной физике. Дубна, 1982.	5 р. 00 к.
Д11-83-511	Труды совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1982.	2 р. 50 к.
Д7-83-644	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Алушта, 1983.	6 р. 55 к.
Д2,13-83-689	Труды рабочего совещания по проблемам излучения и детектирования гравитационных волн. Дубна, 1983.	2 р. 00 к.
Д13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р. 50 к.
Д2-84-366	Труды 7 Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1984.	4 р. 30 к.
Д1,2-84-599	Труды VII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1984.	5 р. 50 к.
Д17-84-850	Труды III Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1984. /2 тома/	7 р. 75 к.
Д10,11-84-818	Труды V Международного совещания по проблемам математического моделирования, программированию и математическим методам решения физических задач. Дубна, 1983	3 р. 50 к.
	Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984 /2 тома/	13 р. 50 к.
Д4-85-851	Труды Международной школы по структуре ядра, Алушта, 1985.	3 р. 75 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу:  
101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79  
Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований



Принимается подписка на препринты и сообщения Объединенного института ядерных исследований.

Установлена следующая стоимость подписки на 12 месяцев на издания ОИЯИ, включая пересылку, по отдельным тематическим категориям:

ИНДЕКС	ТЕМАТИКА	Цена подписки на год
1.	Экспериментальная физика высоких энергий	10 р. 80 коп.
2.	Теоретическая физика высоких энергий	17 р. 80 коп.
3.	Экспериментальная нейтронная физика	4 р. 80 коп.
4.	Теоретическая физика низких энергий	8 р. 80 коп.
5.	Математика	4 р. 80 коп.
6.	Ядерная спектроскопия и радиохимия	4 р. 80 коп.
7.	Физика тяжелых ионов	2 р. 85 коп.
8.	Криогеника	2 р. 85 коп.
9.	Ускорители	7 р. 80 коп.
10.	Автоматизация обработки экспериментальных данных	7 р. 80 коп.
11.	Вычислительная математика и техника	6 р. 80 коп.
12.	Химия	1 р. 70 коп.
13.	Техника физического эксперимента	8 р. 80 коп.
14.	Исследования твердых тел и жидкостей ядерными методами	1 р. 70 коп.
15.	Экспериментальная физика ядерных реакций при низких энергиях	1 р. 50 коп.
16.	Дозиметрия и физика защиты	1 р. 90 коп.
17.	Теория конденсированного состояния	6 р. 80 коп.
18.	Использование результатов и методов фундаментальных физических исследований в смежных областях науки и техники	2 р. 35 коп.
19.	Биофизика	1 р. 20 коп.

Подписка может быть оформлена с любого месяца текущего года.

По всем вопросам оформления подписки следует обращаться в издательский отдел ОИЯИ по адресу: 101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79.

Новгородов А.Ф. и др.

P6-85-918

Простой метод высокотемпературного выделения  $^{111}\text{In}$  из массивной оловянной мишени

Предложен метод количественного выделения в газовую фазу ультрамикрочастиц радиоактивных изотопов индия из облученного протонами или гамма-квантами металлического олова массой до 50 г. Метод прост и осуществляется выдерживанием расплава олова при  $1225 \pm 10$  К в атмосфере паров плавиковой кислоты ( $p_{\text{HF}} \approx p_{\text{H}_2\text{O}}$ ) при их пониженном давлении ( $\sim 0,4$  Па).

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1986

Перевод авторов.

Novgorodov A.F. et al.

P6-85-918

A Simple Method for High-Temperature Separation of  $^{111}\text{In}$  from a Massive Tin Target

A method for quantitative gas-phase separation of ultramicroquantities of indium radioactive isotopes from metallic tin up to 50 g in mass exposed to protons or gamma-quanta is proposed. The method is simple and consists in keeping the  $1225 \pm 10$  K tin melt in hydrofluoric acid steams ( $p_{\text{HF}} \approx p_{\text{H}_2\text{O}}$ ) at a lower pressure ( $\sim 0.4$  Pa).

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1986