

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

Р6-86-379

А.Ф.Новгородов, А.Зелински, А.Колачковски,¹
В.А.Агеев,² А.А.Ключников,² П.Микец³, Я.Микульски,¹
Р.Мисиак, А.Д.Саженок,² М.Собецка

ПРОСТОЙ МЕТОД
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ВЫДЕЛЕНИЯ
ИЗОТОПОВ ТАЛЛИЯ
ИЗ МАССИВНОЙ СВИНЦОВОЙ МИШЕНИ

Направлено в журнал "Радиохимия"

¹ Институт ядерной физики, Краков

² Институт ядерных исследований АН УССР, Киев

³ Институт ядерных исследований ВАН, Дебрецен

1986

Массовые мишени многократного использования (МММИ) давно и успешно применяются на ускорителях частиц промежуточных энергий в исследованиях свойств короткоживущих радионуклидов /1-3/. Вместе с тем такие мишени перспективны для быстрого высокотемпературного выделения ряда радионуклидов, имеющих большое значение в прикладных исследованиях и, в частности, в ядерной медицине /4/. Однако, несмотря на значительные успехи в развитии МММИ, ряд элементов еще не удается достаточно полно и быстро выделять в газовую фазу. Это относится и к радиоактивным изотопам таллия. Предложенные в разное время и различными авторами методы высокотемпературного выделения микроколичеств таллия из фторида /5/ или оксидов свинца /6/, а также из карбида тория /7/ обладают существенными недостатками: необходимостью работать с газами-носителями (или реагентами) при обычном давлении или низким выходом изотопов таллия в ядерных реакциях. Кроме того, все предложенные МММИ представляют собой химические соединения с низким удельным весом и малым содержанием элемента-мишени. Из расплава же металлического свинца, уже около двадцати лет использующегося в качестве мишени ISOL-установок (Isotope Separator On-Line) для получения короткоживущих изотопов ртути /8/, выделение изотопов таллия в вакууме пренебрежимо мало, хотя как материал мишени свинец является наилучшим для получения короткоживущих изотопов этого элемента на ускорителях частиц промежуточных энергий.

Исходя из результатов нашей работы /9/, посвященной высокотемпературному выделению микроколичеств индия из массивной оловянной мишени в газовую фазу, содержащую фторирующие агенты при пониженном давлении, мы провели аналогичное исследование для массивной оловянной мишени. Термические данные /10-12/, относящиеся к металлам и их фторидам для элементов IV и III групп периодической системы, которые представляют собой в данном случае элементы мишени и продукта, суммированы в таблице I, указывавшей на возможность высокотемпературного выделения в газовую фазу монофторидов Ga, In и Tl соответственно из Ge, Sn и Pb. Из таблицы следует также, что фторирующие агенты должны быть "мягкими", исключаящими образование высших фторидов элементов мишени, такими, как, например, U_6F_6 или HF , которые применялись нами в работе /9/.

Таблица I. Энтальпии образования и сублимации, температура плавления и кипения элементов IV и III групп периодической системы и их фторидов

Вещество	$H^{\circ}_{обр.}, 298,$ кДж/моль	$H^{\circ}_{субл.}, 298,$ кДж/моль	$T_{плав.}, K$	$T_{кип.}, K$
Ge	4,6	379,1	1210,4	3120
GeF ₂	-585,8	201,8	1150	1825
GeF ₄	-1158,8	31,0	258,1	236,6(субл.)
Ga	5,6	272,9	302,9	2478
GaF	-234,3	118,9	660	1100
GaF ₂	-669,4	167,0	1080	1450
GaF ₃	-1066,9	188,4	-	1225(субл.)
Sn	6,3	302,1	505,1	2623
SnF ₂	-661,5	185,4	1140	1700
SnF ₄	-1084,4	119,7	720	978
In	6,6	238,1	429,8	2297
InF	-293,1	122,2	725	1175
InF ₂	-669,9	187,1	990	1550
InF ₃	-1046,7	209,4	1443	1650
Pb	6,9	195,1	600,6	2018
PbF ₂	-676,6	239,3	1095	1565
PbF ₄	-942,7	96,3	873	773(субл.)
Tl	6,8	181,0	577	1748
TlF	-327,0	131,4	595	1169
TlF ₃	-732,7	173,7	823	1200

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе использовался металлический свинец (99,9%), который облучался на циклотроне У-240 (ИЯИ АН УССР) или фазотроне ОИЯИ протонами с энергией 65 и 680 МэВ соответственно. Кварцевая аппаратура, в которой проводилось исследование высокотемпературного выделения радиоактивных изотопов таллия, приведена схематично на рис. I. Распределение выделившихся из облученного свинца летучих соединений таллия по кварцевой термохроматографической колонке (ТХК) изучалось в аппаратуре, использовавшейся нами ранее в работах /9,13/. Газами-реагентами служили пары C₆F₆ и концентрированной плавиковой кислоты, которые через никелевый игольчатый вентиль подавались в систему для создания в аппаратуре постоянного давления паров в пределах 0,4-7,0 Па, причем начальный вакуум до пуска паров составлял 3-5·10⁻³ Па. Оценка давления

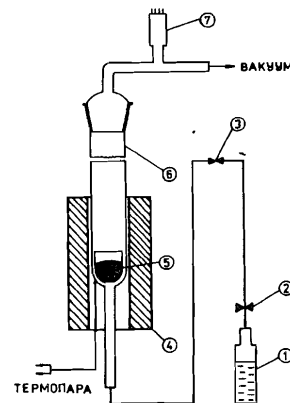


Рис. I. Схема аппаратуры для изучения высокотемпературного выделения таллия из облученного свинца: I - реагент; 2 - зажим; 3 - игольчатый вентиль; 4 - печь; 5 - облученный свинец в кварцевом тигле; 6 - кварцевая труба; 7 - датчик давления.

газов-реагентов осуществлялась вакууметром ВИТ-2 с датчиком ПМТ-2 по градуировочной кривой для воздуха. Нагрев аппаратуры до температур 625-1075 К обеспечивался электropечами сопротивления, причем время достижения заданной температуры составляло около 10 мин. Определение количества выделившегося радиоталлия и распределения его в ТХК проводилось спектрометрически по интенсивности γ -квантов с энергией 439,6 и 1205,7 кэВ, сопровождающих распад ²⁰²Tl и ²⁰⁰Tl, с ошибками не более 10%. Улетучивание материала мишени - свинца определяли гравиметрически или спектрометрически, используя в последнем случае ²⁰³Pb, образующийся при облучении свинца γ -квантами с энергией 18-21 МэВ.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Таблица 2 показывает, что заметное улетучивание таллия из облученного свинца в вакууме начинается при температурах, близких к 1000 К, но сопровождается значительным испарением материала мишени. Использование в качестве газов-реагентов паров H₂O, HCl + H₂O, кислорода и воздуха при их пониженном давлении не привело, как и в случае с оловянной мишенью /9/, к существенному увеличению выхода таллия и одновременно - к уменьшению улетучивания свинца.

Таблица 2. Выделение таллия и улетучивание свинца в вакууме (~ 5·10⁻³ Па) за 1 час при различных температурах. Масса свинца ~ 1 г

Температура, K	825±10	925±10	1025±10	1075±10
Выделение таллия, %	0,21±0,05	13,1±0,6	56±5	89±6
Улетучивание свинца, %	0,05±0,02	0,8±0,1	8±1	16±2

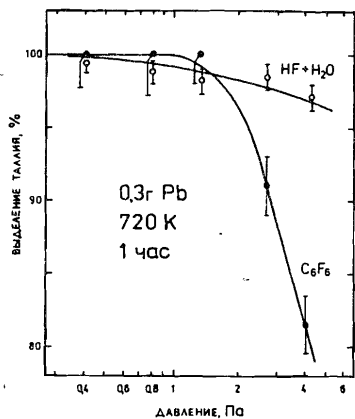


Рис.2. Зависимость выделения радиоталлия в газовую фазу от давления фторирующих газов.

На рис.2 представлены зависимости выделения в газовую фазу радиоталлия от давления двух газов-реагентов: C_6F_6 и $HF + H_2O$ (1:1). Видно, что выделение таллия в газовую фазу, содержащую фторирующие агенты, значительно облегчено по сравнению с вакуумными условиями (ср. табл.2), вместе с тем в среде $HF + H_2O$ оно происходит при прочих равных условиях быстрее, чем в среде паров C_6F_6 , поэтому в дальнейшем использовался лишь один газ-реагент - пары $HF + H_2O$ (1:1), генератором которых служила концентрированная плавиковая кислота. Следует иметь в виду также и то, что использование паров C_6F_6 для создаваемой на основе результатов этой работы мишени ISOI-установки ДЛП ОИЯИ (ЯСНАПП-2) нежелательно из-за негативного влияния продуктов пиролиза гексафторбензола на работу конного источника.

Для более наглядного представления о влиянии давления паров плавиковой кислоты на улетучивание таллия была проведена серия экспериментов при более низкой температуре расплава облученного свинца, причем количество материала мишени было большим, а время процесса - меньшим (рис.3). Из результатов этих экспериментов видно, что увеличение давления паров плавиковой кислоты с 0,4 до 7 Па снижает скорость выделения таллия в газовую фазу примерно в 2 раза и что оптимальное давление паров лежит в области $\leq 0,4$ Па в согласии с оценками, сделанными в работе /14/. Вместе с тем проведенное при различных температурах изучение испарения материала мишени - свинца, меченного изотопом ^{203}Pb (рис.4), указывает на уменьшение улетучивания свинца в изученной области давлений паров

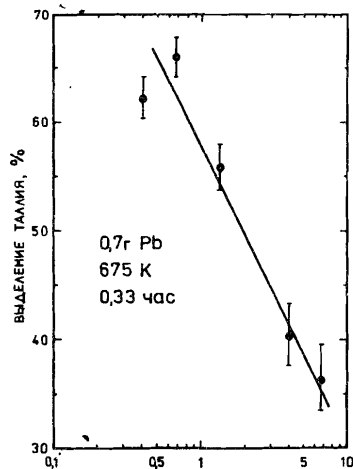


Рис.3. Зависимость выделения радиоталлия в газовую фазу от давления паров плавиковой кислоты.

Для более наглядного представления о влиянии давления паров плавиковой кислоты на улетучивание таллия была проведена серия экспериментов при более низкой температуре расплава облученного свинца, причем количество материала мишени было большим, а время процесса - меньшим (рис.3). Из результатов этих экспериментов видно, что увеличение давления паров плавиковой кислоты с 0,4 до 7 Па снижает скорость выделения таллия в газовую фазу примерно в 2 раза и что оптимальное давление паров лежит в области $\leq 0,4$ Па в согласии с оценками, сделанными в работе /14/. Вместе с тем проведенное при различных температурах изучение испарения материала мишени - свинца, меченного изотопом ^{203}Pb (рис.4), указывает на уменьшение улетучивания свинца в изученной области давлений паров

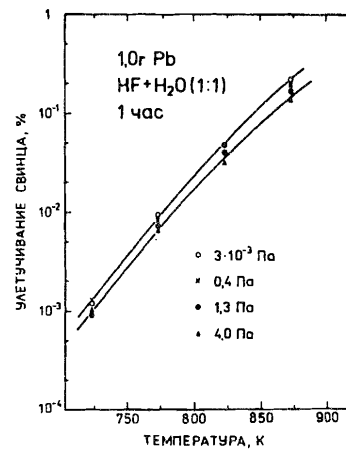


Рис.4. Температурная зависимость испарения свинца при различных давлениях паров плавиковой кислоты.

$HF + H_2O$ также в 1,5-2 раза по сравнению с вакуумным испарением. Сходное поведение таллия и свинца (рис.3 и 4) может быть объяснено, вероятно, блокированием поверхности расплава образующимся слоем фторида (или оксида) свинца, который адсорбирует летучее соединение таллия /5/.

Таким образом, наилучшими условиями выделения радиоталлия можно считать температуру ~ 775 К и давление паров $HF + H_2O$ (1:1) $\leq 0,4$ Па. Обоснованность этих условий демонстрируется на рис.5, из которого видно, что практически полное выделение таллия и одновременно нежелательно высокое испарение материала мишени начинается при температуре около 800 К.

Распределение выделившихся в газовую фазу микроколичеств таллия по кварцевой ТХК приведено на рис.6. Температура зоны

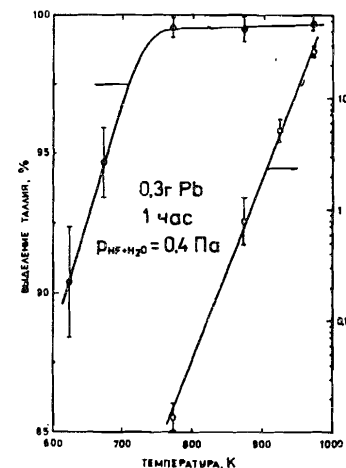


Рис.5. Температурная зависимость выделения таллия и улетучивания свинца при выбранном давлении паров плавиковой кислоты.

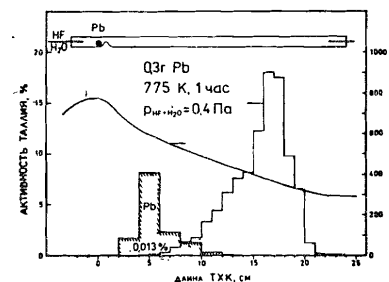


Рис.6. Термохроматограмма микроколичеств радиоталлия и распределение по ТХК испаряющегося свинца. Величина 0,013% представляет собой количество свинца, улетучившегося при термохроматографировании.

адсорбции таллия в среде $\text{HF} + \text{H}_2\text{O}$ равна 400 ± 50 К и совпадает с температурой адсорбции, определенной в экспериментах с парами C_6F_6 , что заставляет считать летучим соединением таллия его монофторид. Более точный ответ на вопрос о химической форме летучего соединения таллия может быть получен в он-лайн-экспериментах. Рис. 6 указывает также на возможность дополнительной термохроматографической очистки радиоталлия от весомых количеств свинца. Сопоставление рис. 5 и 6 позволяет оценить общий коэффициент очистки таллия от свинца за одну операцию, включающую одновременное термохроматографическое концентрирование, как $\geq 10^5$.

Представленные в настоящей работе условия выделения таллия из расплавленного металлического свинца могут служить основой как для создания мишеней ISOL-установок, так и при разработке офф-лайн-методов многократного выделения изотопов таллия, например ^{201}Tl , из свинцовой мишени, обогащенной изотопом ^{206}Pb /15,16/, или же из природного свинца, служащего мишенью в источнике спалогенных нейтронов на ускорителях протонов промежуточных энергий /17/. С учетом последней возможности нами проведена серия экспериментов по выделению таллия из относительно больших количеств свинца, облученного на фазотроне ОИЯИ протонами с энергией 680 МэВ. Результаты, представленные в таблице 3, показывают, что практически полное выделение радиоталлия из 20 г облученного свинца может быть просто осуществлено за 5-8 часов, причем количество улетучившегося свинца не превышает 10-15 мг и большая его часть, как показывает рис. 6, конденсируется в зоне ТХК с температурой выше 500 К.

Таблица 3. Выделение таллия из массивных свинцовых мишеней.
Давление паров $\text{HF} + \text{H}_2\text{O}$ (1:1) $\sim 0,4$ Па

Масса мишени, г	Температура, К	Время выделения, час	Выделение таллия, %	Время выделения 95% таллия, час *
10,8	725 ± 10	2	57 ± 2	7,1
20,1	725 ± 10	2	40 ± 4	11,8
30,2	725 ± 10	3	42 ± 3	16,7
10,5	775 ± 10	2	69 ± 4	5,1
20,6	775 ± 10	2	51 ± 4	8,5
31,6	775 ± 10	2	44 ± 4	10,5
21,7	825 ± 10	2	73 ± 6	4,6
33,2	825 ± 10	2	52 ± 5	8,1

* Расчетные данные.

Следует отметить, что создание на основании результатов этой работы мишени для установки ЯСНАПП-2 потребует дополнительных исследований не только диффузии таллия в расплаве свинца, но и адсорбции монофторида таллия на поверхности различных материалов, из которых будет изготовлена система "мишень - ионный источник". Кроме того, необходимо будет решить задачу он-лайн-отделения таллия от выделяющихся в предлагаемых условиях изотопов рения и ртути.

В заключение авторы выражают благодарность А.Г.Белову за проведение облучений свинца на микротроне МТ-22.

Литература

1. Talbert W.L. Proc. of Int. Conf. on the Properties of Nuclei far from the Region of Beta-Stability, Leysin, Switzerland, 1970, v. 1, p. 109.
2. Ravn H.L. et al. Proc. of the 8th Int. EMIS Conf., Skovde, Sweden, 1973, p. 432.
3. Ravn H.L. Proc. of the 3rd Int. Conf. on Nuclei far from Stability, Cargese, France, 1976, p. 22.
4. Новгородов А.Ф. ОИЯИ, Р6-85-201, Дубна, 1985.
5. Вандлик Я. и др. ОИЯИ, PI2-6234, Дубна, 1972.
6. Баяр Б. и др. ОИЯИ, I2-7573, Дубна, 1973.
7. Ravn H.L. Proc. of a Workshop on the ISOLDE Programme. Abstracts, Zinal, Switzerland, 1984, p. D9.
8. Finger M. et al. CERN, 70-29, Geneva, 1970.
9. Новгородов А.Ф. и др. ОИЯИ, Р6-85-918, Дубна, 1985.
10. Термические константы веществ. Под ред. В.П.Глушко. ВИНТИ, М., 1970, вып. IV.
11. Термические константы веществ. Под ред. В.П.Глушко. ВИНТИ, М., 1971, вып. V.
12. Верятин У.Д. и др. Термодинамические свойства неорганических веществ. Атомиздат, М., 1965.
13. Новгородов А.Ф. и др. ОИЯИ, 6-84-609, Дубна, 1984.
14. Hoff P. et al. NIM, 1984, 221, 2, p. 313.
15. Lagunas-Solar M.C. IEEE Trans. Nucl. Sci., 1983, NS-30, 2, p. 1805.
16. Зайцева Н.Г. и др. ОИЯИ, Р6-85-254, Дубна, 1985.
17. Beyer G.-J., Ravn H.L. Proc. of a Workshop on the ISOLDE Programme, Abstracts, Zinal, Switzerland, June 18-22, 1984.

Рукопись поступила в издательский отдел
13 июня 1986 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

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

- | | | |
|---------------|--|-------------|
| 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 нейтринной 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. |
| Д11-85-791 | Труды Международного совещания по аналитическим вычислениям на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1985. | 4 р. |
| Д13-85-793 | Труды XII Международного симпозиума по ядерной электронике. Дубна 1985. | 4 р. 80 к. |

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

Новгородов А.Ф. и др.

P6-86-379

Простой метод высокотемпературного выделения изотопов таллия из массивной свинцовой мишени

Предложен метод количественного выделения в газовую фазу радиоталлия из облученного протонами металлического свинца массой до 20 г. Метод осуществляется путем простого выдерживания расплава свинца при температуре около 800 К в атмосфере паров плавиковой кислоты ($\text{HF}/\text{H}_2\text{O} \approx 1$) при пониженном давлении $/\leq 0,4 \text{ Па}/$.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1986

Перевод М.И.Потапова

Novgorodov A.F. et al.

P6-86-379

A Simple Method for High-Temperature Separation of Thallium Isotopes from a Massive Lead Target

A method for quantitative separation of radiothallium from proton-irradiated metallic lead up to 20 g in mass is proposed. The method consists in simply keeping the 800 K lead melt in hydrofluoric acid steams ($\text{HF}/\text{H}_2\text{O} \approx 1$) at a lower pressure ($\leq 0.4 \text{ Pa}$).

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1986