

**ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА**

P6-87-182

**Н.А.Лебедев, А.Ф.Новгородов, Я.Словак,
В.А.Халкин, Л.Эхн**

**ПОЛУЧЕНИЕ ПРЕПАРАТОВ $^{146,147,149}\text{Gd}$
ИЗ ЕВРОПИЯ, ОБЛУЧЕННОГО ПРОТОНАМИ
С ЭНЕРГИЕЙ 100 МэВ**

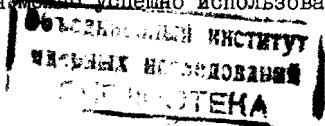
**Направлено в Оргкомитет XI Радиохимической
конференции, Марианские Лазни, ЧССР, апрель 1987 г.**

1987

Нейтрондефицитные нуклиды ^{146}Gd ($T_{1/2} = 46$ сут), ^{147}Gd ($T_{1/2} = 38,5$ ч) и ^{149}Gd ($T_{1/2} = 9,3$ сут), необходимые для всестороннего исследования их распада методами ядерной спектроскопии, обычно получают в реакциях глубокого расщепления более тяжелых элементов протонами промежуточной энергии. В Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ для этих целей успешно применялось облучение танталовых ^{1/1} и эрбиевых ^{1/2} мишеней на пучке протонов синхроциклотрона с энергией 660 МэВ. Хотя сечения образования вышеуказанных нуклидов при этом невелики ($I \pm 5$ мс), благодаря особенностям облучения мишеней на внутреннем пучке протонов ^{1/3} необходимые их количества (4 ± 40 МБк) получались в мишени массой $2 + 4$ г при экспозиции $5 + 20$ мкА·ч.

После реконструкции синхроциклотрона по ряду технических причин возможность облучения радиохимических мишеней на внутреннем протонном пучке отсутствует, и для получения радионуклидов с аналогичной активностью облучением тех же мишеней на выведенном пучке, плотность которого значительно ниже, чем внутреннего, необходимо пропорционально увеличивать длительность облучения или массу мишени. На практике эти требования выполнить трудно, так как продолжительность облучений лимитирована, а масса мишеней ограничена технологией ее радиохимической обработки.

Исследования образования ^{167}Tm в иттербиевой мишени под действием протонов с энергией $65 \div 100$ МэВ ^{1/4} показали, что сечения реакций типа p, xn ($x = 3 \div 8$) и соответственно выходы нейтрондефицитных нуклидов лютеция существенно больше, чем при облучении тантала протонами с энергией 660 МэВ, и позволили предположить, что такие же высокие выходы искомых нуклидов гадолиния будут получены и при облучении европиевой мишени. Так как образующаяся при этом система элементов макроколичество европия – микроколичество гадолиния по химическим свойствам очень близка к системе $\text{Yb} - \text{Tm}$ (Lu), для их разделения можно успешно использовать тот же метод селективного погло-



Результаты и обсуждение

чения макрокомпонента амальгамой натрия из буферного натрий-ацетатного раствора. Определению выхода нуклидов ^{146}Gd , ^{147}Gd , ^{149}Gd и отработке технологии их выделения из европиевой мишени массой до 5 г посвящена данная работа.

Эксперимент

Так как металлический европий, в отличие от иттербия, на воздухе быстро окисляется, в работе использовали оксид европия промышленного изготовления (сорт "0", 99,95% Eu_2O_3) или специально очищенный с содержанием примесей гадолиния не более $1 \cdot 10^{-4}\%$. Мишени для определения выхода радионуклидов в зависимости от энергии протонов представляли собой набор таблеток и мониторинных фольг диаметром 10 мм общей толщиной около 13 г/см^2 . Таблетки готовили прессованием определенного количества оксида (0,85 - 0,90 г) под давлением около 5000 кг/см^2 . Плотность полученных таблеток обычно составляла $5,3 - 5,5 \text{ г/см}^3$. После удаления с поверхности непрочного удерживающихся частиц оксида таблетки взвешивали и упаковывали в алюминиевую фольгу толщиной 10 мкм таким образом, чтобы торцевые поверхности были закрыты равномерным слоем алюминия определенной толщины (это необходимо для учета потерь энергии протонов в упаковочном материале). Промаркированные таблетки и мониторинные фольги помещали в тонкостенную алюминиевую капсулу.

Мишени облучали протонами с энергией 100 МэВ на линейном ускорителе-инжекторе ЛУ-100 (ИФВЭ, Протвино), ориентируя капсулу соосно пучку протонов. Экспозиции облучения составляли от 50 до 200 мкА·ч.

Расчет потерь энергии протонов при прохождении их через мишень, определение абсолютных активностей радионуклидов в мониторинных фольгах и в таблетках оксида европия, приготовление реагентов, а также процессы цементации европия и выделения гадолиния выполняли, как в работе с иттербиевой мишенью^{4/}. При хроматографической очистке гадолиния в качестве элюента использовали буферный раствор α -оксиизобутирата аммония с концентрацией 0,16 моль/л (рН = 4,5).

Зависимости выхода нуклидов ^{146}Gd , ^{147}Gd и ^{149}Gd от глубины расположения слоя вещества мишени и соответственно от энергии взаимодействующих протонов, рассчитанного на конец облучения, представлены на рис. 1. По ним легко определить полный выход нуклидов как в толстой мишени ($^{146}\text{Gd} - 7,8 \cdot 10^7$ Бк/мкА·г; $^{147}\text{Gd} - 3,6 \cdot 10^9$ Бк/мкА·г; $^{149}\text{Gd} - 5,5 \cdot 10^8$ Бк/мкА·г), так и в любой заданной ее части.

На каждой представленной зависимости имеются два четко выраженных максимума. Это обусловлено тем, что европий имеет два изотопа ($^{151}\text{Eu} - 47,62\%$, $^{153}\text{Eu} - 52,18\%$), и ядерные реакции, приводящие к образованию каждого нуклида гадолиния, происходят с вылетом разного числа нейтронов, а следовательно, имеют наибольшие сечения при разных энергиях протонов. Так как максимумы выхода отдельных нуклидов в большинстве случаев не совпадают по толщине мишени, из разных ее частей можно получать препараты радиогадолиния, обогащенные интересующим нуклидом.

На основании полученных данных можно приблизительно оценить выход нуклидов при облучении мишени из моноизотопов европия. В этом случае обогащение различных частей мишени отдельными нуклидами и удельный их выход, очевидно, будут более высокими. Однако практическое использование этого эффекта в значительной мере ограничено высокой стоимостью разделенных изотопов европия.

Радионуклиды ^{151}Gd ($T_{1/2} = 120$ дн) и ^{153}Gd ($T_{1/2} = 241$ сут) при данных условиях образуются в сравнительно малых количествах. Так как имеются более эффективные методы их получения на низкоэнергетических циклотронах^{5/}, в нашей работе их выход не определялся.

Схема процесса и рабочие условия выделения радиогадолиния из европиевой мишени приведены на рис. 2.

При указанных в схеме условиях растворения мишени для установления нужного значения рН раствора к нему следует добавить равный объем насыщенного раствора ацетата натрия. При этом одновременно получается оптимальная для первого цикла цементации концентрация европия (≤ 120 мг/мл), а также ацетат- и хлор-ионов ($\approx 2,5$ н).

Результаты последовательного цементационного извлечения европия из раствора, показанные на рис. 3, получены при соотно-

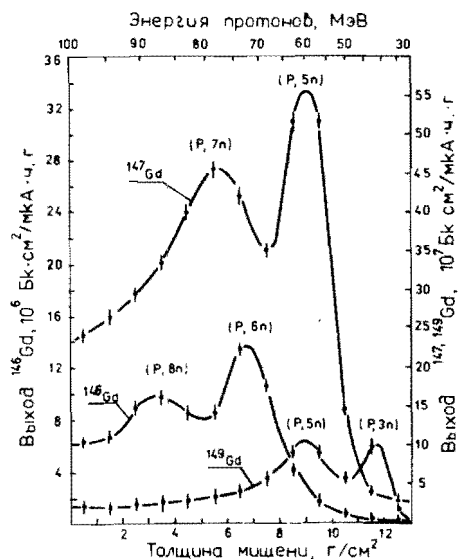


Рис. 2. Схема процесса выделения и концентрирования радионуклидов гадолиния.

шении объемов раствора и амальгамы 1:0,6 и продолжительности их перемешивания в течение 1 мин в первых трех циклах цементации с постепенным увеличением до 3 мин в последних. Увеличение указанной продолжительности контакта амальгамы с раствором целесообразно, так как из-за сильного повышения pH раствора начинается выпадение осадка $\text{Eu}(\text{OH})_3$ и процесс цементации прекращается. По этой же причине увеличение относительного объема используемой амальгамы приводит к нерациональному ее расходу.

Рис. 1. Распределение изотопов гадолиния по толщине мишени из оксида европия, облученной протонами с энергией 100 МэВ.

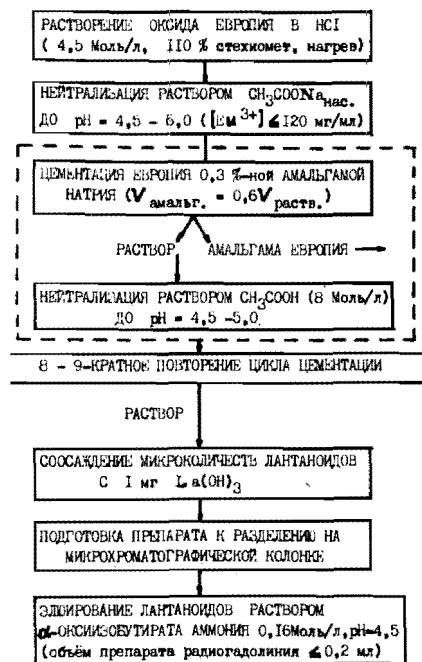
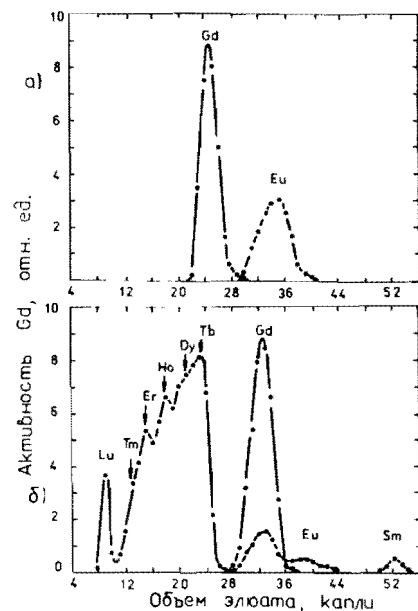


Рис. 3. Уменьшение содержания европия в растворе при многократной цементации его амальгамой натрия.



При выполнении цементации в экстракторе неизбежно образуются мелкие капли раствора европия, которые частично оседают на стенках прибора и в дальнейшем неконтролируемым образом снова переходят в основной раствор. Если в первых циклах цементации это явление не играет заметной роли, то в последних уже хорошо очищенный от европия раствор может недопустимо сильно им загрязниться. Поэтому после пяти циклов цементации рекомендует-

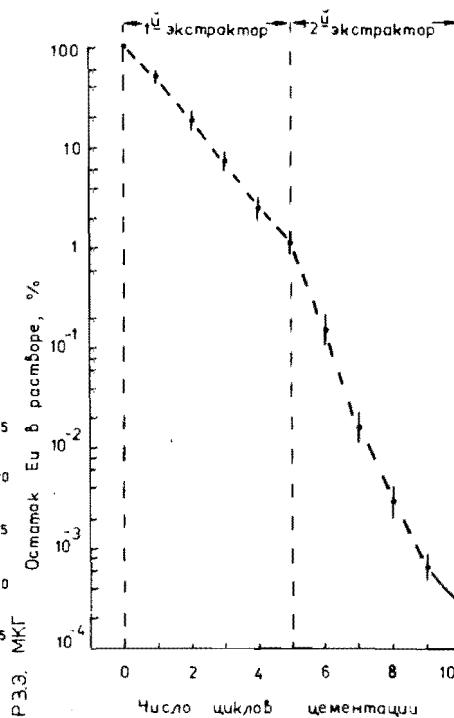


Рис. 4. Хроматографическая очистка радиогадолиния, полученного из: а) очищенного европия, б) европия сорта "о". Колонка $\varnothing 2 \times 100$ мм Дауэкс 50 \times 8 (20 - 30 мкм). Элюент - α -окси-изобутират аммония 0,16 моль/л, pH = 4,5. Объем капли - 0,025 мл.

ся процесс продолжать в другом (чистом) экстракторе. В результате после 9 - 10 циклов концентрация европия в растворе удается снизить в $(2 + 5) \cdot 10^5$ раз. Оставшийся в количестве 10- 100 мкг европий не мешает последующему процессу хроматографической очистки гадолиния (рис. 4) даже в присутствии заметных количеств других лантаноидов (хроматограмма "б").

Так как в оксиде европия другие РЗЭ, за исключением иттербия, концентрируются вместе с гадолинием, метод цементации позволяет производить предварительную глубокую очистку материала мишени от мешающих примесей (хроматограмма "а") и может быть использован для концентрирования примесей РЗЭ с целью повышения чувствительности анализа европиевой продукции высокой чистоты.

Предлагаемая методика разделения гадолиния и европия, несмотря на кажущуюся громоздкость из-за многократного повторения цементационных циклов, удобна с практической точки зрения. Все радиохимические операции относительно просты в исполнении, в том числе за биологической защитой. Благодаря хорошей воспроизводимости результатов цементации европия процесс разделения элементов можно выполнять, не прибегая к тщательному контролю за составом системы. Несомненным достоинством является и то, что гадолиний практически не поглощается амальгамой натрия. Поэтому его потери в процессе цементации составляют $1 + 2\%$, а общий химический выход достигает 90%.

Авторы выражают благодарность Н.Г.Зайцевой, Л.М.Поппинковой, В.И.Соболеву за помощь в облучении мишеней, Р.Мисиаку и М.Собецкой за помощь в измерениях активности нуклидов.

Литература

1. До Ким Тунг, Лебедев Н.А., Нгуен Гуинь Май, Нгуен Конг Чанг, Халкин В.А.-Радиохимия, 1984, т.26, № 2, с.210-214.
2. Херрманн Э., Гроссе-Рюкен Х., Лебедев Н.А., Халкин В.А.-Радиохимия, 1964, т. 6, № 6, с.756-762.
3. Лебедев Н.А. ОИЯИ, 6-7243, Дубна, 1973.
4. Нгуен Конг Чанг, Агеев В.А., Колачковски А. и др. ОИЯИ, Р6-85-253, Дубна, 1985.

Рукопись поступила в издательский отдел
23 марта 1987 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

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

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.
Д4-85-851	Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984 /2 тома/	13 р. 50 к.
Д11-85-791	Труды Международной школы по структуре ядра, Алушта, 1985.	3 р. 75 к.
Д13-85-793	Труды Международного совещания по аналитическим вычислениям на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1985.	4 р.
Д3,4,17-86-747	Труды X Международного симпозиума по ядерной электронике. Дубна 1985.	4 р. 80 к.
	Труды V Международной школы по нейтронной физике. Алушта, 1986.	4 р. 50 к.

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

ТЕМАТИЧЕСКИЕ КАТЕГОРИИ ПУБЛИКАЦИЙ
ОБЪЕДИНЕННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

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

Лебедев Н.А. и др.

P6-87-182

Получение препаратов $^{146,147,149}\text{Gd}$ из европия, облученного протонами с энергией 100 МэВ

С целью разработки методики получения высокоактивных препаратов нейтронодефицитных нуклидов гадолиния исследовано образование $^{146,147,149}\text{Gd}$ при облучении природного европия протонами с энергией 100 МэВ. Получены данные о распределении этих нуклидов по толщине мишени. Найдено, что в мишени из оксида европия толщиной 13 г/см^2 они образуются в количествах: ^{146}Gd ($T_{1/2} = 48,3 \text{ сут}$) - $7,8 \cdot 10^7 \text{ Бк/мкА} \cdot \text{ч}$; ^{147}Gd ($T_{1/2} = 38,1 \text{ ч}$) - $3,6 \cdot 10^9 \text{ Бк/мкА} \cdot \text{ч}$; ^{149}Gd ($T_{1/2} = 9,3 \text{ сут}$) - $5,5 \cdot 10^7 \text{ Бк/мкА} \cdot \text{ч}$. Разделение элементов производится методом цементации европия 0,3%-ной амальгамой натрия из ацетатного раствора с $\text{pH} = 4,5$. Радиogaдолиний концентрируется из раствора соосаждением с гидроксидом лантана и очищается от следов европия на катионообменной микроколонке. Продолжительность процесса разделения 3 часа, химвыход $\geq 90\%$.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1987

Перевод М.И.Потапова

Lebedev N.A. et al.

P6-87-182

Production of $^{146,147,149}\text{Gd}$ Sources from Europium Irradiated with 100 MeV Protons

To develop a production technique of highly active neutron-deficient gadolinium nuclide sources, production of $^{146,147,149}\text{Gd}$ at irradiation of natural europium with 100 MeV protons was studied. The data on distribution of these nuclides over the target thickness were obtained. A europium oxide target 13 g/cm^2 thick used, they were found to be produced in the following quantities: ^{146}Gd ($T_{1/2} = 48.3 \text{ days}$) - $7.8 \cdot 10^7 \text{ Bq/}\mu\text{A} \cdot \text{h}$; ^{147}Gd ($T_{1/2} = 38.1 \text{ h}$) - $3.6 \cdot 10^9 \text{ Bq/}\mu\text{A} \cdot \text{h}$; ^{149}Gd ($T_{1/2} = 9.3 \text{ days}$) - $5.5 \cdot 10^7 \text{ Bq/}\mu\text{A} \cdot \text{h}$. Elements were separated through europium cementation by 0.3% sodium amalgam from the acetate solution with $\text{pH} = 4.5$. Radiogaolinium is concentrated by lanthanum hydroxide precipitation and is purified of europium traces in a cation-exchange microcolumn. Separation takes ≤ 3 hours, chemical yield is $\geq 90\%$.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1987