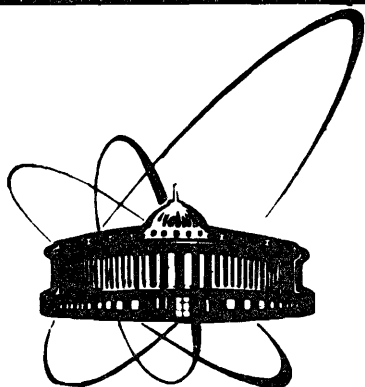


87-879



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

H_i 7.26

P6-87-879

А.Ф.Новгородов, А.Зелински, А.Колачковски,
Р.Мисиак, М.Собеца, В.А.Агеев,¹ А.Г.Белов,
М.Каскевич, А.А.Ключников,¹ А.А.Одинцов,¹
Я.Микульски²

ПРОСТОЙ МЕТОД
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО
ВЫДЕЛЕНИЯ ГАЛЛИЯ-67
ИЗ МАССИВНОЙ ГЕРМАНИЕВОЙ МИШЕНИ

Направлено в журнал "Радиохимия"



¹ Институт ядерных исследований АН УССР, Киев

² Институт ядерной физики, Краков

1987

ВВЕДЕНИЕ

Ga-67, один из наиболее широко используемых в ядерной медицине радионуклидов, получают в промышленном масштабе, облучая, как правило, обогащенные изотопы цинка протонами или дейтронами низкой энергии^{/1-8/}. В последние годы появилась возможность крупномасштабной наработки этого радионуклида на ускорителях средних энергий при облучении более тяжелых, чем галлий, элементов^{/9-12/}, и хотя наработка Ga-67 на таких установках, как LAMPF и TRIUMF может достигать сотен кюри, радиохимическое выделение его из значительных количеств (до килограмма и более) материала мишени представляет трудную задачу^{/13/}. Успешное решение таких задач, на наш взгляд, может обеспечиваться применением высокотемпературных методов, основанных на улетучивании продуктов ядерных реакций из массивных мишеней, что позволяет многократно использовать материал мишени^{/14,15/}.

Наиболее подходящим материалом для создания массивной мишени многократного использования (МММИ) для получения Ga-67 на ускорителях средних энергий, на наш взгляд, является германий, однако, как отмечалось в работах^{/16,17/}, заметное улетучивание галлия из массивной германиевой мишени в вакууме не наблюдалось даже при температуре около 1450 К, когда скорость испарения самого материала мишени становится весьма высокой ($\sim 0,1$ мг/см²с)^{/18/}. Следует подчеркнуть, что разработка метода быстрого выделения галлия из германиевой МММИ крайне необходима не только с точки зрения получения высокоактивных препаратов Ga-67, но и развития мишеней ISOL (Isotope Separator on-line)-установок^{/19/}. Кроме того, нужно отметить, что относительно высокий выход ⁶⁷Ga и наблюдается при облучении протонами с энергией выше 60 МэВ^{/20/} германиевой мишени. Для увеличения выхода Ga-67 и снижения загрязнения продукта изотопом Ga-72 заманчиво использовать в этом случае германий, обогащенный легкими изотопами (A = 70 и 72), однако это также требует разработки способа многократного использования материала мишени без его существенных потерь.

Ранее нами было показано^{/21,22/}, что скорости улетучивания микроколичеств индия и таллия из массивных соответственно оловянной и свинцовой мишеней значительно увеличивается при пониженных давлениях (0,4 ÷ 4,0 Па) паров плавиковой кислоты ($p_{H_2O} \approx p_{HF}$). Исходя из термодинамических данных^{/22/} ожидалось, что и микро-

количества галлия как аналога индия и таллия будут выделяться в газовую фазу указанного выше состава и давления значительно быстрее, чем в условиях высокого вакуума. С целью проверки этого предположения, а также оценки количеств и чистоты Ga-67, который может быть получен на фазотроне ОИЯИ и циклотроне У-240 (ИЯИ АН УССР) при облучении германия, и была проведена настоящая работа.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе использовался высокочистый германий (для полупроводниковых детекторов), который облучался на циклотроне У-240 (ИЯИ АН УССР) и фазотроне ОИЯИ протонами с энергией 65 и 650 МэВ соответственно. Кварцевая аппаратура, в которой проводилось исследование высокотемпературного выделения микроколичеств галлия в газовую фазу из германия и распределение летучих соединений галлия в термохроматографической колонке (ТХК), была такой же, как в наших ранних работах, где проводилось изучение выделения индия и таллия соответственно из олова¹²¹ и свинца¹²². Газом-реагентом служили пары концентрированной плавиковой кислоты ($p_{HF} \approx p_{H_2O}$). Нагревание аппаратуры обеспечивалось электропечами сопротивления, причем время достижения заданной температуры в пределах $1275 \div 1475$ К составляло менее 10 мин. Определение количеств выделившегося радиогаллия и улетучившегося материала мишени проводилось гамма-спектрометрически с ошибками не более 10%, причем в последнем случае использовался ^{69}Ge , образующийся при облучении германия γ -квантами с энергией $18 \div 21$ МэВ на микротроне МТ-22.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис.1 показаны температурные зависимости улетучивания Ga-67 из расплава металлического германия массой ~ 1 г, выдержанного в течение 1 часа в вакууме ($\leq 5 \cdot 10^{-3}$ Па) и в атмосфере паров концентрированной плавиковой кислоты ($\sim 1,3$ Па). На рис.2 представлены температурные зависимости испарения самого материала мишени — германия в вакууме и при давлениях пара концентрированной плавиковой кислоты 0,4 и 4,0 Па. Видно, что в присутствии паров реагента испарение германия уменьшается в 2-3 раза по сравнению с чистым вакуумом, а выделение Ga-67 увеличивается примерно на порядок ($T \sim 1400$ К).

Учитывая то, что зона адсорбции микроколичеств галлия и зона конденсации германия (см. рис.3) перекрываются только частично, коэффициент очистки ^{67}Ga от материала мишени составляет $> 10^5$ без существенного уменьшения его общего химического выхода. Отметим, что галлий окончательно смывается практически полностью слабым

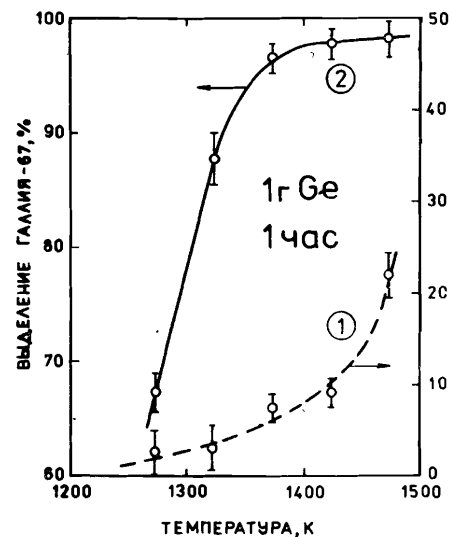


Рис.1. Температурные зависимости выделения галлия-67 в вакууме (1) и при пониженном давлении ($\sim 1,3$ Па) паров концентрированной плавиковой кислоты (2).

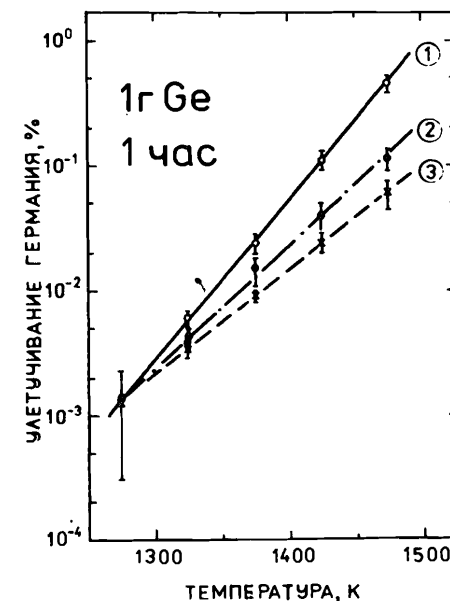
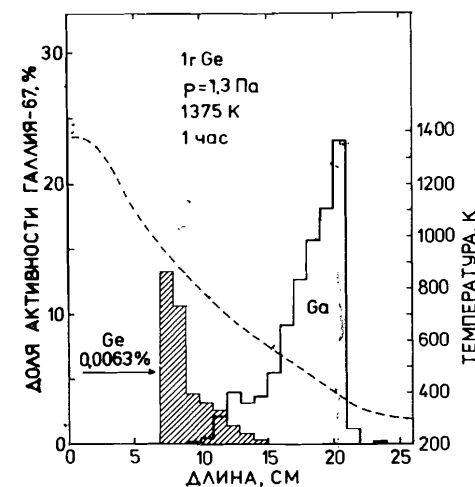


Рис.2. Температурные зависимости испарения германия в вакууме (1) и при пониженных давлениях паров концентрированной плавиковой кислоты: 0,4 Па (2) и 4,0 Па (3).

Рис.3. Термохроматограмма галлия, выделенного в газовую фазу из облученного протонами германия. Диаметр кварцевой ТХК 7 мм.



раствором соляной кислоты ($0,05 \div 0,1$ М) с поверхности зоны кварцевой ТХК, находившейся при температуре $500 \div 300$ К.

Принимая во внимание возможность получения значительных количеств Ga-67 на фазотроне ОИЯИ, мы провели ряд экспериментов с одной и той же германовой мишенью (см. табл.1).

Из табл.1 видно, что период полувыделения микроколичеств галлия из расплава высотой около 10 мм составляет в данных условиях примерно 20 мин. Несложность операций по выделению галлия и резуль-

Таблица 1. Четырехкратное выделение микроколичеств галлия из германиевой мишени массой 13,1 г. Давление паров HF + H₂O (1:1) ~1,3 Па. Температура (1375 ± 10) К

Дата	Высота слоя расплава, мм	Время выделения, ч	Выделение галлия, %
15.05.87	9,6	2,0	97,3 ± 2,3
28.05.87	12,1	1,0	80,0 ± 3,5
16.06.87	10,5	1,0	87,4 ± 2,6
22.06.87	11,0	1,0	83,9 ± 2,8

таты этой таблицы позволяют разумно увеличить толщину германиевой мишени до 20 мм (10,6 г/см²).

Для расчета наработки Ga-67 и его радиоизотопной чистоты мы провели измерения сечений образования ряда изотопов галлия в тонкой германиевой мишени, облученной на фазотроне ОИЯИ протонами с энергией 650 МэВ (см. табл.2). Определения проводились на двух γ -спектрометрах с использованием Ge(Li)-детекторов. Использовано 5 независимо облученных мишеней толщиной ~0,6 г/см², причем время облучений не превышало 15 мин. Сечение образования ²⁴Na в алюминиевых мониторах принято равным 10,0 мб. В табл.2 включено сечение образования Zn-72, содержание которого должно учитываться при облучении радиоизотопно-чистого спалогенного Ga-67, а именно — при определении оптимальных соотношений времени наработки, охлаждения мишени, химического выделения и выдержки полученного препарата. При этом в лучшем случае общий выход Ga-67 удовлетворительной чистоты будет составлять лишь 25-30% от первоначально наработанного его количества в мишени.

Аналогичное положение возникает и при наработке Ga-67 в германиевой мишени, облученной на циклотроне У-240 протонами с энергией 65 МэВ. Выходы ⁶⁶Ga, ⁶⁷Ga и ⁷²Ga в мишени толщиной 4,5 г/см² составляют по нашим измерениям примерно 4,1, 1,7 и 3,2 мКи/мкА·ч на конец кратковременного облучения, что приводит к необходимости выдержке препарата Ga-67 в течение недели, за счет чего действительный выход снижается до ~400 мКи/мкА·ч и становится ниже, чем при использовании дейтронов с энергией 16 МэВ и мишени из обогащенного Zn-66¹²³¹.

Повысить выход Ga-67 и существенно снизить содержание в продукте Ga-72, позволит, как указывалось выше, применение в качестве многократного использования материала мишени германия, обогащенного легкими изотопами (A = 70 и 72). При этом в такой мишени может быть накоплено достаточное количество Ge-68, являющегося генерато-

Таблица 2. Сечения образования радионуклидов, определяющих выход и радиоизотопную чистоту спалогенного Ga-67 при использовании Ge-мишени

Радионуклид	Период полураспада, ч	Сечение образования, мб
Галлий-66	9,3	11,32 ± 0,26
Галлий-67	78,3	25,96 ± 0,14
Галлий-72	14,1	11,76 ± 0,26
Цинк-72	46,5	0,602 ± 0,004
Галлий-73	4,9	9,53 ± 0,13

ром перспективного для позитронной эмиссионной томографии Ga-68, многократное выделение которого можно реализовать, используя способ, изложенный в данной работе и являющийся более предпочтительным в случае низкой удельной активности Ge-68, чем предложенные ранее, например, в работе¹²⁴¹.

ЛИТЕРАТУРА

1. Краснов Н.Н. и др. — *Изотопы в СССР*, 1972, №27, с.11-14.
2. Helus F., Maier-Borst W. — *Radiopharm. and Labelled Compounds*, v.1, IAEA, Vienna, 1973, p.317-324.
3. Chaudhri M.A. — *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, 1979, NS-26, No. 2, part 1, p.2281-2286.
4. Qaim S.M. — *Radiochimica Acta*, 1982, 30, 3, p.147-162.
5. Waters S.L., Silvester D.J. — *Radiochimica Acta*, 1982, 30, 3, p.163-173.
6. Lagunas-Solar M.C. — *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, 1983, NS-30, No.2, p.1805-1808.
7. Дмитриев П.П. Выход радионуклидов в реакциях с протонами, дейтронами, альфа-частицами и гелием-3. М.: Энергоатомиздат, 1986.
8. *Handbook on Nuclear Activation Data. Technical Reports Series, No. 273, IAEA, Vienna, 1987.*
9. Dropesky B.J., Brien H.A. LA-5120-PR, 1972.
10. Grant P.M. et al. — *J. Label. Comp. and Radiopharm.*, 1979, 16, 1, p.212-213.
11. Grutter A. — *IJARI*, 1982, 33, 9, p.725-732.
12. Grant P.M. et al. — *IJARI*, 1982, 33, 6, p.415-417.
13. Thomas K.E. — *Radiochimica Acta*, 1983, 34, 3, p.135-138.
14. Ravn H.L. *Proc. of 3rd Intern. Conf. on Nucl. Far from Stability*, 1976, Geneva, CERN 75-13, p.22-29.
15. Новгородов А.Ф. ОИЯИ Р6-85-201, Дубна, 1985.

16. Talbert W.L. *Proc. of Int. Conf. on the Prop. of Nucl. Far from the Region of Beta-Stability*, 1970, Geneva, CERN 70-30, v. 1, p.109-141.
17. Kluge H.-J. *Isolde User's Guide*, CERN 86-05, Geneva, 1986.
18. Дзшман С. *Научные основы вакуумной техники*. М.: ИИ, 1950.
19. Bjornstad T. et al. *CERN-EP/86-130*, Geneva, 1986.
20. Horiguchi T. et al. - *IJARI*, 1983, 34, 11, p.1531-1535.
21. Новгородов А.Ф. и др. – *Радиохимия*, 1987, 29, 2, с.254-258.
22. Новгородов А.Ф. и др. – *Радиохимия*, 1987, 29, 4, с.549-554.
23. Neirinckx R.D. – *IJARI*, 1976, 27, 1, p.1-4.
24. Lambrecht R.M. – *Radiochimica Acta*, 1983, 34, 1, p.9-24.

Новгородов А.Ф. и др.

P6-87-879

Простой метод высокотемпературного выделения галлия-67 из массивной германиевой мишени

Предложен метод количественного выделения в газовую фазу галлия-67 из облученного протонами германия массой 10-15 г. Метод прост и осуществляется выдерживанием расплава облученного германия при (1373 ± 10) К в атмосфере паров плавиковой кислоты ($p_{HF} \approx p_{H_2O}$) при их пониженном давлении ($\sim 1,3$ Па).

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1987

Перевод О.С.Виноградовой

Novgorodov A.F. et al.

P6-87-879.

A Simple Method for High-Temperature Separation of Gallium-67 from a Massive Germanium Target

A method for quantitative gas-phase separation of gallium-67 from 10-15 g of proton-irradiated germanium is proposed. The method is simple and consists in keeping the 1373 ± 10 K irradiated germanium melt in hydrofluoric acid steam ($p_{HF} = p_{H_2O}$) at a lower pressure (~ 1.3 Pa).

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1987

Рукопись поступила в издательский отдел
17 декабря 1987 года.