

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

88-911

P6-88-911

Н.Г.Зайцева, О.Кнотек, А.Ковалев, П.Микец,
Э.Рураж, В.А.Халкин, В.А.Агеев*,
А.А.Ключников*, Л.А.Кузина*, А.Ф.Линев*

ФУНКЦИИ ВОЗБУЖДЕНИЯ
РЕАКЦИЙ $^{113,114}\text{Cd}(p,xn)^{111}\text{In}$
И ВЫХОДЫ ^{111}In
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МИШЕНЕЙ КАДМИЯ
ПРОТОНОМАМИ С ЭНЕРГИЕЙ ~ 65 МэВ

Направлено в "International Journal Applied
Radiation and Isotopes"

* Институт ядерных исследований АН УССР, Киев

1988

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время радионуклид ^{111}In относится к группе пяти циклотронных радионуклидов, играющих важную роль в ядерной медицине / ^{67}Ga , $^{81\text{m}}\text{Kr}$, ^{111}In , ^{123}I , ^{201}Tl / . Было показано, что ^{111}In может быть успешно использован при локализации и определении опухолей, в исследованиях лимфатической системы, для получения многочисленных меченых соединений /¹/.

Для целого ряда *in-vivo* исследований медленных биологических процессов, которые необходимо наблюдать в течение 1-3 дней после введения препарата, ^{111}In имеет благоприятные характеристики распада. Его период полураспада равен 2,83 дн., 100%-й электронный захват при распаде приводит к возбужденному состоянию ^{111}Cd , которое снимается каскадом гамма-лучей с энергией 171,3 и 245,4 кэВ и интенсивностью 90,3% и 94%. Соответствующие усредненные энергии /и интенсивности/ конверсионных электронов низки: 144,6 кэВ /10%/ и 218,6 кэВ /6%/ . Энергия Оже-электронов равна ~20 кэВ. Энергии гамма-лучей ^{111}In находятся в оптимальной области для фотопиков, регистрируемых коммерческими гамма-камерами и сканнерами либо по отдельности, либо суммарно /184 фотона на 100 актов электронного захвата/. В последнем случае достигается лучшая статистика или более быстрое накопление данных.

Принципиальные способы получения ^{111}In , как это иллюстрирует табл.1, включают прямые и косвенные реакции его образования. Этот список не исчерпывает всех возможностей, например, $^{112}\text{Sn}(\gamma, n)^{111}\text{Sn} \rightarrow ^{111}\text{In}$ /²/ .

Для расчета Q-величин были использованы значения атомных масс, взятые из работы /³/ . При определении необходимой лабораторной энергии налетающих частиц для заданных ядерных реакций рассчитывались их энергетические пороги. Другой важный фактор - кулоновский барьер и эффективный барьер, объясняющие туннельный эффект /⁴/ , высоты которых также приведены в табл.1. Рассмотрение энергетических порогов и барьера различных ядерных реакций показывает, что ^{111}In может быть получен на компактных циклотронах с энергией частиц ≤ 20 МэВ, но некоторые реакции требуют более высокоэнергетических машин.

Обычно ^{111}In получают при облучении мишени серебра α -частицами в реакции $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2n)^{111}\text{In}$ /⁵⁻¹¹/ , мишней кадмия

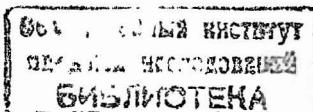


Таблица 1

Пороги реакции и кулоновские барьеры для реакций, приводящих к образованию ^{111}In

| $\frac{\text{Н}}{\text{Д}}$ | Реакция | Природное содержание (%) | Q (МэВ) | Дорога реакции кулоновского барьера (МэВ) | Высота барьера (МэВ) | Эффективный барьер (МэВ) |
|-----------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------|-----------|-------------------------------------------|----------------------|--------------------------|
| I | $^{111}\text{Cd}(\text{p}, \text{n})^{111}\text{In}$ | | 12,75 | -1,62 | 1,63 | 8,49 |
| 2 | $^{112}\text{Cd}(\text{p}, 2\text{n})^{111}\text{In}$ | | 24,07 | -II, 02 | II, 10 | 8,47 |
| 3 | $^{113}\text{Cd}(\text{p}, 3\text{n})^{111}\text{In}$ | | 12,26 | -17,56 | 17,72 | 8,45 |
| 4 | $^{114}\text{Cd}(\text{p}, 4\text{n})^{111}\text{In}$ | | 28,86 | -26,60 | 26,80 | 8,43 |
| 5 | $^{110}\text{Cd}(\text{d}, \text{n})^{111}\text{In}$ | | 12,36 | 3,10 | 0 | 8,15 |
| 6 | $^{111}\text{Cd}(\text{d}, 2\text{n})^{111}\text{In}$ | | 12,75 | -3,85 | 3,92 | 8,13 |
| 7 | $^{109}\text{Ag}(\text{d}, \text{n})^{111}\text{In}$ | | 48,65 | 6,55 | 0 | 15,52 |
| 8 | $^{109}\text{Ag}(\text{d}, 2\text{n})^{111}\text{In}$ | | 48,65 | -14,03 | 14,50 | 15,17 |
| 9 | $^{112}\text{Sn}(\text{p}, 2\text{n})^{111}\text{Sb}_{\frac{75}{35}\text{Sn}} \xrightarrow{\beta^+} {}^{111}\text{Sn} \xrightarrow{33, \beta^+} {}^{111}\text{In}$ | | 0,95 | -17,06 | 17,21 | 8,82 |
| 10 | $^{114}\text{Sn}(\text{p}, 4\text{n})^{111}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} {}^{111}\text{Sn} \longrightarrow {}^{111}\text{In}$ | | 0,65 | -35,10 | 35,41 | 8,78 |
| 11 | $^{115}\text{Sn}(\text{p}, 5\text{n})^{111}\text{Sb} \longrightarrow {}^{111}\text{In}$ | | 0,34 | -42,65 | 43,02 | 8,76 |
| 12 | $^{116}\text{Sn}(\text{p}, 6\text{n})^{111}\text{Sb} \longrightarrow {}^{111}\text{Sn} \longrightarrow {}^{111}\text{In}$ | | 14,24 | -52,21 | 52,66 | 8,74 |
| 13 | $^{112}\text{Sn}(\text{p}, 3\text{n})^{111}\text{Sb} \longrightarrow {}^{111}\text{Sn} \longrightarrow {}^{111}\text{In}$ | | 7,57 | -59,15 | 59,65 | 8,72 |
| 14 | $^{118}\text{Sn}(\text{p}, 8\text{n})^{111}\text{Sb} \longrightarrow {}^{111}\text{Sn} \longrightarrow {}^{111}\text{In}$ | | 24,01 | -68,47 | 69,05 | 8,70 |
| 15 | $^{110}\text{Cd}(\text{p}, 2\text{n})^{111}\text{Sn} \longrightarrow {}^{111}\text{In}$ | | 12,39 | -5,62 | 5,77 | 15,82 |
| | | | | | | II, 13 |

действием в реакциях $^{110}\text{Cd}(\text{d}, \text{n})^{111}\text{In}$, $^{111}\text{Cd}(\text{d}, 2\text{n})^{111}\text{In}$ /^{8,10-12/} или протонами в реакциях $^{111}\text{Cd}(\text{p}, \text{n})^{111}\text{In}$ и $^{112}\text{Cd}(\text{p}, 2\text{n})^{111}\text{In}$ /^{5,6,13-15/}. Выходы ^{111}In в ядерных реакциях на серебре гораздо ниже, чем из мишени кадмия, облученных протонами /см. табл. 6/. Однако ^{111}In , полученный из Cd мишени, содержит на конец облучения также и другие нуклиды индия: $^{109}\text{In} /T_{1/2} = 4,3$ ч/, $^{110}\text{In} /T_{1/2} = 4,9$ ч/ и $^{114m}\text{In} /T_{1/2} = 49,5$ дн./. Последний нуклид, имеющий основные гамма-лучи следующих энергий /кэВ/ и интенсивностей /%/: 191,6 /16,7/; 558 /3,6/ и 725,2 /3,5/, заметно увеличивает радиационную дозу для пациента: доза от 1 мКи ^{111}In в 80 раз меньше, чем от 1 мКи ^{114m}In /^{15/}. Уровень примеси ^{114m}In в препарате, получаемом из облученного протонами Cd, меняется от 0,003% /^{14/} до 3% /^{5/} от активности ^{111}In . Этот уровень зависит от степени обогащения материала мишени и вклада от соответствующих ядерных реакций. То же имеет место и при облучении дейtronами, когда загрязнения от ^{114m}In в ряде случаев достигают 6%.

Облучение серебра ^3He и α -частицами приводит к образованию ^{111}In без следов ^{114m}In . Однако реакция $^{109}\text{Ag}(^3\text{He}, \text{n})^{111}\text{In}$ не подходит для получения ^{111}In из-за слишком низкого выхода, ~2 мКи/мкА·ч на конец облучения /^{5,16/}.

Сравнительное исследование перечисленных путей получения ^{111}In на компактных медицинских циклотронах показывает, что наиболее высокий выход ^{111}In получается в реакции $^{112}\text{Cd}(\text{p}, 2\text{n})^{111}\text{In}$ с высокообогащенным ^{112}Cd /^{5/}.

Для того, чтобы выбрать наилучшие условия для получения ^{111}In , требуется информация о функциях возбуждения реакций образования ^{111}In и побочных продуктах, а также об их выходах из толстых мишеней /^{13,16-25/}. Такие данные известны не для всех реакций, которые приводят к образованию ^{111}In . В частности, до настоящего времени нет такой информации для реакций $^{113,114}\text{Cd}$ с высокоэнергетическими протонами $E_p > 30$ МэВ, прямой путь получения ^{111}In , табл. 1/.

Исследованию этих реакций и разработке метода отделения ^{111}In от кадмия посвящено настоящее исследование.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

A. Мишени и облучение

Сечения $\text{Cd}(\text{p}, \text{xn})\text{In}$ реакций определяли методом стопки фольг. Этот метод позволяет исследовать функции возбуждения каждого типа реакций и выбрать оптимальный энергетический интервал для получения искомого продукта с минимальным количеством примесей.

Таблица 2

Изотопный состав /%/ мишени Cd

| Мишень Изотоп | прир. Cd | ^{113}Cd | ^{114}Cd |
|-------------------|----------|-------------------|-------------------|
| ^{106}Cd | 1,25 | 0,01 | 0,01 |
| ^{108}Cd | 0,89 | 0,01 | 0,01 |
| ^{110}Cd | 12,5 | 0,12 | 0,10 |
| ^{111}Cd | 12,8 | 0,12 | 0,11 |
| ^{112}Cd | 24,1 | 1,98 | 0,34 |
| ^{113}Cd | 12,2 | $95,8 \pm 0,3$ | 0,28 |
| ^{114}Cd | 28,7 | 2,47 | $98,9 \pm 0,1$ |
| ^{116}Cd | 7,5 | 0,21 | 0,27 |

Были использованы стопки металлических фольг природного и обогащенного кадмия. Металлический кадмий, обогащенный изотопами ^{113}Cd и ^{114}Cd , получен из Государственного фонда стабильных изотопов СССР. Изотопный состав материала мишени приведен в табл. 2.

Стопка состояла из 23÷25 пронумерованных дисков диаметром 10 мм, вырезанных из фольг толщиной $\sim 0,13 \text{ г}/\text{см}^2$ для ^{113}Cd и ^{114}Cd и $0,24 \text{ г}/\text{см}^2$ для природного кадмия. Для облучения собиралась стопка чередующихся друг с другом дисков ^{113}Cd и ^{114}Cd общей толщиной $\sim 6,8 \text{ г}/\text{см}^2$ и стопка дисков из природного Cd толщиной $\sim 6,3 \text{ г}/\text{см}^2$.

Мишени облучались выведенным пучком протонов с энергией $63 \pm 1 \text{ МэВ}$ в течение 0,5 ч на изохронном циклотроне У-240 в Институте ядерных исследований АН УССР. Поглощение энергии протонов каждым диском Cd рассчитывалось по данным таблиц²⁸. Интенсивность протонного пучка ограничивали несколькими сотнями наноампер для избежания локального перегрева Cd ($T_{\text{пл}} = 321^\circ\text{C}$) и его испарения. В качестве мониторной реакции для определения интенсивности протонного пучка, проходящего через мишень, служила реакция $^{27}\text{Al}(\text{p},3\text{p})^{24}\text{Na}$, сечение которой для $E_p = 65 \text{ МэВ}$ равно 10 мб²⁷.

Для облучения стопку фольг помещали в держатель мишени, вставляемый в блок, охлаждаемый водой. После облучения мишени транспортировали в тяжелом свинцовом контейнере в радиохимическую лабораторию ОИЯИ. Работа с мишенью начиналась через ~ 50 ч

после конца облучения, за это время полностью распадались короткоживущие радионуклиды.

Б. Измерения и анализ результатов

Измерения активности каждого диска Cd из мишенной сборки образцов проводили с помощью гамма-спектрометра, состоящего из Ge(Li)-детектора /объем 40 см³, разрешение 1,2 кэВ на линии $E_\gamma = 122 \text{ кэВ}$ ^{57}Co / и 4096-канального анализатора, соединенного с ЭВМ ЕС-1010. Эффективность детектора определяли с помощью набора стандартных источников / ^{152}Eu , ^{57}Co , ^{203}Hg , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co / . Радиоактивные нуклиды в облученных образцах идентифицировали по энергиям соответствующих фотопиков. Активность каждого диска определяли по результатам серии измерений /5÷8 раз/ в интервале от 60 до 500 ч после конца облучения. Такой длительный интервал измерения позволил достоверно определить примесь ^{114}mIn .

Обработку измеренных гамма-спектров проводили по программе ЭТАП²⁸, полученные значения активностей использовали для расчета сечений реакций образования и выходов нуклидов индия.

В. Радиохимическое выделение индия из облученных мишеней кадмия

Метод отделения радиоиндия в состоянии без носителя от макроподколичеств облученного кадмия был разработан на основе данных о различии коэффициентов распределения ионов индия и кадмия между катионитом типа Дауэкс

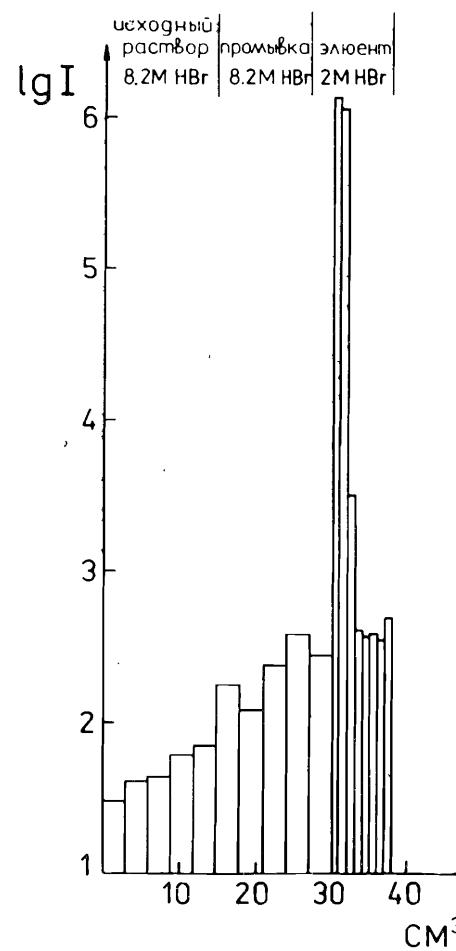


Рис.1. Гистограмма элюирования радиоактивного индия в состоянии без носителя из колонки с Дауэкс-50x4 раствором 2 М HBr.

50×4 и растворами бромистоводородной кислоты в зависимости от ее концентрации^{/29/}. Облученный металлический кадмий растворяли в горячей 8 М HBr, полученный раствор пропускали через колонку с Дауэкс 50×4 /Br⁻-форма/. В соответствии с величинами K_D ионов Ag⁺, Cd²⁺ и In³⁺ в виде комплексных бромидных анионов [InBr₄]⁻, равных соответственно <1, <1 и ~80, ионы индия сорбировались на смоле, а кадмий и возможные примеси радиоактивных нуклидов серебра оставались в растворе. Для полного удаления следов Cd колонку тщательно промывали концентрированной HBr. Радиоиндий вымывали из колонки раствором 2 М HBr /рис.1/. Химический выход индия был равен ~90%. Радионуклидную чистоту проверяли, измеряя гамма-спектр препарата, выделенного из облученного кадмия через 5 дн. после конца облучения. В спектре были видны гамма-линии, принадлежащие только ¹¹¹In/171 и 245 кэВ и суммарный пик от их совпадения при измерении детектором 417 кэВ/ и ^{114m}In /190 кэВ/.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

А. Экспериментальные функции возбуждения

Сечения реакций ¹¹³Cd(p,3n)¹¹¹In, ¹¹⁴Cd(p,4n)¹¹¹In и ¹¹⁴Cd(p,n)^{114m}In были определены в зависимости от энергии падающих протонов. Полученные результаты приведены в табл.3 и 4 и на рис.2 и 3. Величины представляют среднеарифметические значения нескольких измерений. Ошибки измеренных сечений и выходов оценены в ±20%. Они определяются ошибками статистики счета, измерений эффективности регистрации гамма-лучей Ge(Li)-детектором, геометрии измерений, данных распада, определения толщины фольг Cd, энергетических потерь протонов, времени облучения и ошибками, связанными с мониторированием пучка протонов.

Известно, что функции возбуждения характеризуются такими параметрами, как максимальное значение сечения реакций, его положение в зависимости от энергии, значение его ширины на половине высоты. Измерения показывают, что реакция ¹¹³Cd(p,3n)¹¹¹In имеет $\sigma_{\max} = 682$ мб при $E_p = 32$ МэВ и $E_{1/2} = 14$ МэВ в интервале 24÷38 МэВ; реакция ¹¹⁴Cd(p,4n)¹¹¹In имеет $\sigma_{\max} = 500$ мб при $E_p = 42$ МэВ и $E_{1/2} = 17$ МэВ в интервале 35÷52 МэВ.

Эти данные для указанных реакций получены впервые.

Как видно, начальная энергия изученных реакций (p, xn) находится в хорошем согласии с величиной энергетического порога реакций, а измеренные функции возбуждения, согласно

Сечения ¹¹³Cd(p,3n)¹¹¹In -реакции и выходы ¹¹¹In и ^{114m}In для тонких мишеней как функция энергии протонов

| № образцов | Энергия протонов (МэВ) | | Сечение образования III In (мб) | Выход ^{III In} (мкКи/мкА·ч) | Выход ^{114m In} (мкКи/мкА·ч) |
|------------|------------------------|----------|---------------------------------|--------------------------------------|---------------------------------------|
| | вход/выход | середина | | | |
| I | 63,4-62,7 | 63,0 | 78 | 122 | |
| 2 | 61,8-61,1 | 61,5 | 78 | 127 | |
| 3 | 60,3-59,5 | 59,9 | 82 | 138 | |
| 4 | 58,6-57,8 | 58,2 | 85 | 144 | |
| 5 | 56,9-56,1 | 56,5 | 92 | 143 | |
| 6 | 55,2-54,4 | 54,8 | 101 | 155 | |
| 7 | 53,5-52,6 | 53,0 | 102 | 172 | |
| 8 | 51,6-50,7 | 51,2 | III | 185 | |
| 9 | 49,7-48,8 | 49,3 | 122 | 199 | 0,05 |
| 10 | 47,8-46,9 | 47,3 | 138 | 224 | |
| II | 45,9-44,9 | 45,4 | 159 | 254 | 0,06 |
| 12 | 43,8-42,8 | 43,3 | 186 | 311 | 0,06 |
| 13 | 41,6-40,6 | 41,1 | 245 | 411 | 0,09 |
| 14 | 39,4-38,3 | 38,8 | 326 | 539 | 0,14 |
| 15 | 37,1-36,0 | 36,6 | 461 | 725 | 0,12 |
| 16 | 34,9-33,6 | 34,2 | 606 | 1005 | 0,29 |
| 17 | 32,3-31,0 | 31,7 | 682 | 1143 | 0,27 |
| 18 | 29,7-28,4 | 29,0 | 629 | 1045 | 0,31 |
| 19 | 26,9-25,3 | 26,1 | 518 | 868 | 0,30 |
| 20 | 23,8-22,3 | 23,0 | 263 | 409 | 0,18 |
| 21 | 20,5-18,7 | 19,6 | 37 | 64 | 0,18 |
| 22 | 16,6-14,4 | 15,5 | 14 | 23 | 0,51 |
| 23 | 12,0-9,2 | 10,6 | 3,0 | 5 | 0,40 |
| 24 | 5,8 | 3,3 | 4,0 | 7 | 0,03 |

Таблица 4

Сечения $^{114}\text{Cd}(\text{p}, 4\text{n})^{111}\text{In}$, $^{114}\text{Cd}(\text{p}, 4\text{n})^{114\text{m}}\text{In}$
реакций и выходы ^{111}In и $^{114\text{m}}\text{In}$ для тонких
мишеней как функция энергии протонов

| № образ- цов | Энергия протонов (МэВ) | | Сечение образо- вания III In (мб) | Выход III In (мкКи/ мкА·ч) | Сечение образо- вания $^{114\text{m}}\text{In}$ (мб) | Выход $^{114\text{m}}\text{In}$ (мкКи/ мкА·ч) |
|-----------------|------------------------|----------|--------------------------------------------------|-------------------------------------------|------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------|
| | вход/выход | середина | | | | |
| I | 62,7-61,8 | 62,3 | II9 | 208 | 8 | 0,8 |
| 2 | 61,1-60,3 | 60,7 | I29 | 210 | 8 | 0,8 |
| 3 | 59,5-58,6 | 59,0 | I42 | 244 | 9 | 0,8 |
| 4 | 57,8-56,9 | 57,3 | I60 | 279 | 9 | 1,0 |
| 5 | 56,1-55,2 | 55,6 | I78 | 308 | 9 | 0,9 |
| 6 | 54,4-53,5 | 54,0 | 207 | 366 | I2 | 1,2 |
| 7 | 52,6-51,6 | 52,1 | 257 | 459 | II | 1,1 |
| 8 | 50,7-49,7 | 50,2 | 309 | 548 | I0 | 1,0 |
| 9 | 48,8-47,8 | 48,3 | 367 | 638 | II | 1,1 |
| 10 | 46,9-45,9 | 46,3 | 45I | 773 | II | 1,1 |
| II | 44,9-43,8 | 44,3 | 486 | 864 | I2 | 1,2 |
| I2 | 42,8-41,6 | 42,2 | 500 | 88I | I5 | 1,5 |
| I3 | 40,6-39,4 | 40,0 | 462 | 8I4 | I4 | 1,4 |
| I4 | 38,3-37,1 | 37,7 | 385 | 65I | I6 | 1,6 |
| I5 | 36,0-34,9 | 35,4 | 243 | 406 | I5 | 1,4 |
| I6 | 33,6-32,3 | 33,0 | 98 | I66 | I8 | 1,8 |
| I7 | 31,0-29,7 | 30,4 | 22 | 37 | 22 | 2,1 |
| I8 | 28,4-26,9 | 27,6 | I0 | I7 | 26 | 2,6 |
| I9 | 25,3-23,8 | 24,6 | 8 | I4 | 29 | 2,8 |
| 20 | 22,3-20,5 | 21,4 | 6 | I0 | 38 | 3,7 |
| 21 | 18,7-16,6 | I7,6 | 5 | 6 | 90 | 9,1 |
| 22 | I4,4-I2,0 | I3,2 | 3 | 8 | I78 | I7,2 |
| 23 | 9,2-5,8 | 7,5 | I | 2 | 39 | 3,9 |

Рис. 2. Измеренные сечения и теоретические функции возбуждения $^{113}\text{Cd}(\text{p}, \text{xn})\text{In}$ реакций, рассчитанные по программе ALICE. Стрелки на шкале энергий указывают теоретические значения энергетических порогов реакций.

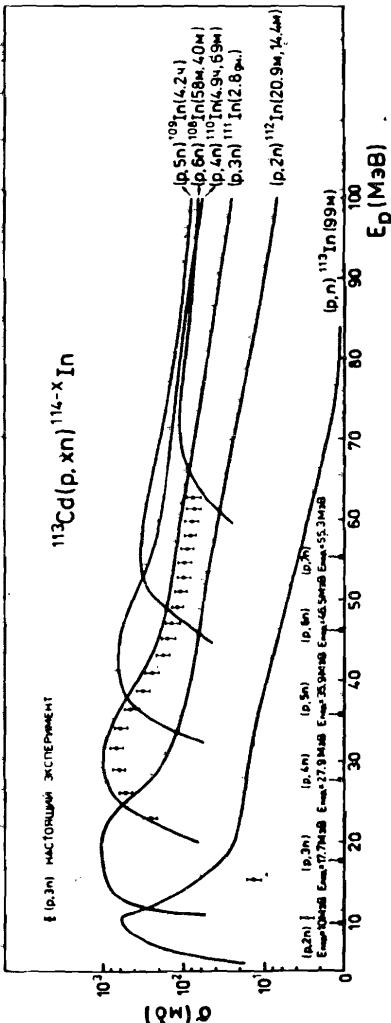


Рис. 3. Измеренные сечения и теоретические функции возбуждения $^{114}\text{Cd}(\text{p}, \text{xn})\text{In}$ реакций, рассчитанные по программе ALICE. Стрелки на шкале энергий указывают на теоретические значения энергетических порогов реакций.

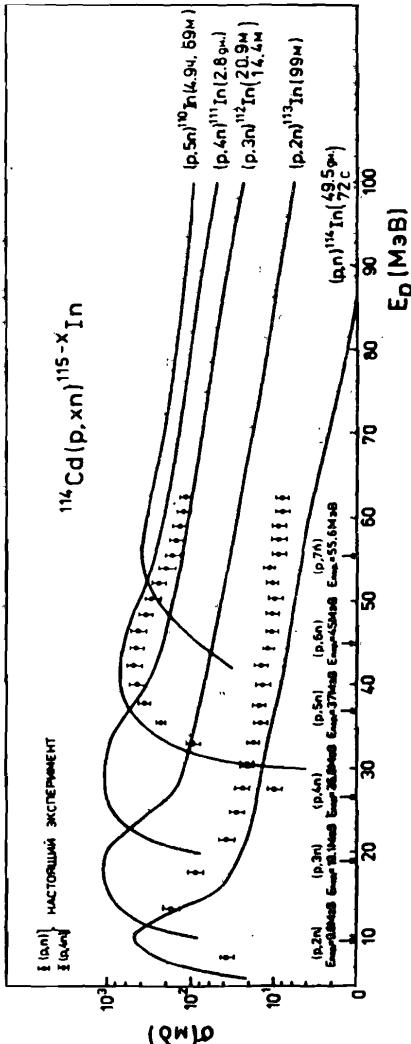


Таблица 5

Суммарные сечения образования $\text{прир}^{\text{Cd}}(\text{p}, \text{xn})^{111}\text{In}$
и $\text{прир}^{\text{Cd}}(\text{p}, \text{xn})^{114\text{m}}\text{In}$ реакций и выходы ^{111}In
и $^{114\text{m}}\text{In}$ для тонких и толстых мишней как функция
энергии протонов

теории, начинаются выше кулоновского барьера с очень низких значений. Затем сечения $^{113}\text{Cd}(\text{p}, 3\text{n})^{111}\text{In}$ и $^{114}\text{Cd}(\text{p}, 4\text{n})^{111}\text{In}$ быстро растут с увеличением энергии протонов, достигают максимального значения, после чего уменьшаются, сохраняя "хвостовую" часть в высокогенергетической области. Сечения этих реакций, как показывают полученные результаты, близки сечениям реакций $^{111}\text{Cd}(\text{p}, \text{n})^{111}\text{In}$ и $^{112}\text{Cd}(\text{p}, 2\text{n})^{111}\text{In}$ /18, 17/, обычно используемых для получения ^{111}In . Следует отметить, что в низкогенергетической области имеется неопределенность в результатах, которую можно приписать вкладу от реакций (p, xn) на примесях ^{111}Cd и ^{112}Cd в обогащенных ^{113}Cd и ^{114}Cd /табл. 2/.

Б. Теоретические функции возбуждения

Теоретические функции возбуждения реакций $^{113}\text{Cd}(\text{p}, \text{xn})$, $\text{x} = 1/5$, и $^{114}\text{Cd}(\text{p}, \text{xn})$, $\text{x} = 1/6$, были рассчитаны по известной программе ALICE, основанной на механизме равновесных и предравновесных ядерных реакций в соответствии с гибридной моделью^{/30/}. Расчеты проведены на CYBER-компьютере в Институте ядерных исследований /Сверк, Польша/.

Рассчитанные по программе ALICE функции возбуждения показаны на рис. 2 и 3, откуда видно, что они следуют ожидаемому ходу кривой. В высокогенергетической области функции возбуждения отражают предравновесные процессы. Явно выраженный максимум функций возбуждения $^{113}\text{Cd}(\text{p}, 3\text{n})$ и $^{114}\text{Cd}(\text{p}, 4\text{n})$ реакций подтверждает предположение, что в рассматриваемом энергетическом интервале реакции протекают главным образом через образование компаунд-ядер. Экспериментальная функция возбуждения $^{113}\text{Cd}(\text{p}, 3\text{n})$ реакции хорошо согласуется с расчетной как по форме, так и по абсолютным значениям величин /рис. 2/. В случае $^{114}\text{Cd}(\text{p}, 4\text{n})^{111}\text{In}$ /рис. 3/ экспериментальные сечения перекрывают расчетными по всей исследованной энергетической области. Противоположная ситуация наблюдается для реакции $^{114}\text{Cd}(\text{p}, \text{n})^{114\text{m}}\text{In}$. Здесь следует отметить, что рассматривается образование только $^{114\text{m}}\text{In}$, так как сечение образования ^{114}In / $T_{1/2} = 72$ с/ неизвестно, и оно не определялось в этой работе.

В. Выходы ^{111}In и $^{114\text{m}}\text{In}$

Выходы ^{111}In и $^{114\text{m}}\text{In}$, измеренные в ядерных реакциях на мишнях природного кадмия и кадмия, обогащенного изотопами ^{113}Cd и ^{114}Cd , как функция энергии протонов, приведены в табл. 3-5 и на рис. 4-6. Ошибка определения выходов равна $\pm 20\%$ и включает те же неопределенностии, как и при определении сечений реакций образования этих нуклидов.

| № об- раз- цов | Энергия протонов (МэВ) | Суммар- ное се- чение образо- вания ^{111}In (мб) | III ^{111}In | | Суммар- ное се- чение образо- вания $^{114\text{m}}\text{In}$ (мб) | Выход $^{114\text{m}}\text{In}$ тон- кая ми- шень толс- тая ми- шень | | |
|-------------------------|---------------------------|------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|--------------|--------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| | | | вход/выход | сре- дина | тонкая толстая мишень | тон- кая ми- шень | толс- тая ми- шень | толс- тая ми- шень |
| 1 | 63,9-62,5 | 63,2 | 9I | 266 | 266 | 9 | I,2 | I,2 |
| 2 | 62,5-61,0 | 61,7 | 92 | 274 | 540 | I0 | I,3 | 2,5 |
| 3 | 61,0-59,5 | 60,3 | 95 | 285 | 825 | I0 | I,4 | 3,9 |
| 4 | 59,5-58,0 | 58,8 | 94 | 279 | II04 | 9 | I,4 | 5,3 |
| 5 | 58,0-56,4 | 57,2 | 97 | 285 | I389 | I0 | I,4 | 6,7 |
| 6 | 56,4-54,8 | 55,6 | I03 | 300 | I689 | I0 | I,4 | 8,I |
| 7 | 54,8-53,2 | 54,0 | I08 | 320 | 2009 | 9 | I,4 | 9,5 |
| 8 | 53,2-51,5 | 52,4 | II9 | 347 | 2356 | II | I,5 | II,0 |
| 9 | 51,5-49,8 | 50,6 | I3I | 382 | 2738 | I0 | I,5 | I2,5 |
| I0 | 49,8-48,1 | 48,9 | I49 | 442 | 3180 | I2 | I,9 | I4,4 |
| II | 48,1-46,3 | 47,2 | I77 | 5I8 | 3698 | I2 | 2,0 | I6,4 |
| I2 | 46,3-44,4 | 45,3 | I93 | 575 | 4273 | I2 | 2,I | I8,I |
| I3 | 44,4-42,6 | 43,5 | 2I2 | 632 | 4905 | I4 | 2,4 | 20,5 |
| I4 | 42,6-40,6 | 41,6 | 2I0 | 624 | 5529 | I5 | 2,6 | 23,I |
| I5 | 40,6-38,6 | 39,6 | 202 | 598 | 6I27 | I9 | 2,8 | 25,9 |
| I6 | 38,6-36,5 | 37,6 | I87 | 555 | 6682 | 26 | 3,4 | 29,3 |
| I7 | 36,5-34,3 | 35,4 | I73 | 5I6 | 7I98 | 37 | 4,0 | 33,3 |
| I8 | 34,3-32,0 | 33,2 | I6I | 475 | 7673 | 47 | 4,8 | 38,I |
| I9 | 32,0-29,6 | 30,8 | I86 | 550 | 8223 | 53 | 5,5 | 43,6 |
| I0 | 29,6-27,0 | 28,3 | 229 | 685 | 8908 | 44 | 5,2 | 48,8 |
| I1 | 27,0-24,I | 25,5 | 2I9 | 663 | 957I | I7 | 2,7 | 5I,5 |
| I2 | 24,I-2I,2 | 22,6 | I68 | 5I0 | I008I | 24 | 3,3 | 54,8 |
| I3 | 2I,2-I7,9 | I9,5 | 75 | 239 | I0320 | 37 | 7,3 | 62,I |
| I4 | I7,9-I4,I | I6,0 | 22 | 66 | I0386 | 9 | I,9 | 64,0 |
| I5 | I4,I-9,7 | I1,9 | I5 | 44 | I0430 | I,0 | 0,2 | 64,2 |

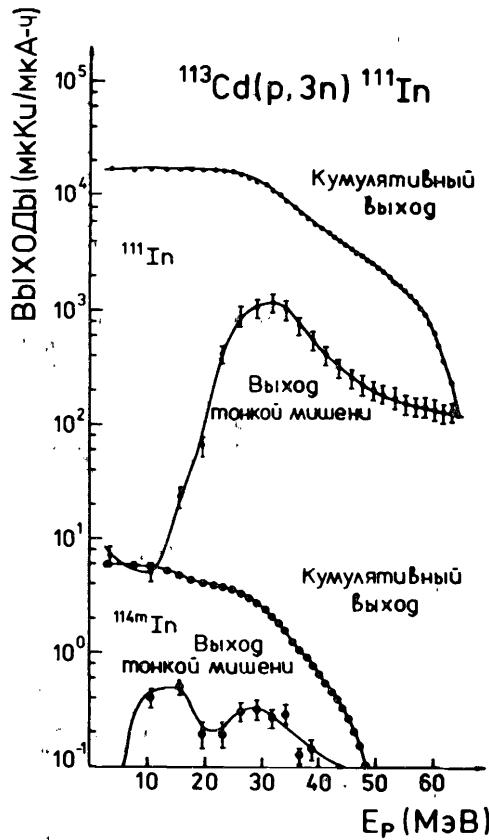


Рис.4. Выходы ^{111}In и $^{114\text{m}}\text{In}$ для тонких и толстых мишеней ^{113}Cd как функция энергии протонов.

Сравнивая полученные результаты с выходами реакций $^{111}\text{Cd}(\text{p},\text{n})^{111}\text{In}$ и $^{112}\text{Cd}(\text{p},2\text{n})^{111}\text{In}$ /табл. 6/, можно видеть определенные преимущества в случае облучения ^{113}Cd протонами с энергией ≤ 65 МэВ: ^{111}In получается с хорошей радионуклидной чистотой и более высоким выходом. Образование нежелательного $^{114\text{m}}\text{In}$ может быть понижено до минимума при использовании высокообогащенных мишеней.

При облучении обогащенно-го ^{114}Cd загрязнения $^{114\text{m}}\text{In}$, образующегося в реакции (p,n) , получаются на порядок величины выше по сравне-нию с $^{111},^{112},^{113}\text{Cd}$ мишенями. Принимая во внимание тот факт, что большая часть

$^{114\text{m}}\text{In}$ образуется в низкоэнергетической области, реакция $^{114}\text{Cd}(\text{p},4\text{n})^{111}\text{In}$ открывает возможность использования высокоэнергетической части протонного пучка /65 \rightarrow 36,5 МэВ/ для получения ^{111}In почти такой же чистоты, как в случае $^{113}\text{Cd}(\text{p},3\text{n})^{111}\text{In}$, если использовать высокообогащенный материал мишени. Протонный пучок, выходящий из ^{114}Cd мишени толщиной $3,9 \text{ г}/\text{см}^2 /E_p = 65 \rightarrow 36,5 \text{ МэВ}/$, может быть направлен в ^{113}Cd мишень толщи-ной $1,6 \text{ г}/\text{см}^2 /E_p = 36,5 \rightarrow 23 \text{ МэВ}/$. Таким образом, обе реа-кции $^{114}\text{Cd}(\text{p},4\text{n})$ и $^{113}\text{Cd}(\text{p},3\text{n})$, захватывающие энергетические интервалы со своими максимальными значениями функций возбужде-ния, могут быть использованы одновременно при облучении тандем-ной мишени $^{114}\text{Cd} + ^{113}\text{Cd}$ и дать высокий выход ^{111}In /до $\sim 24 \text{ мКи}/\text{мкА}\cdot\text{ч}/$.

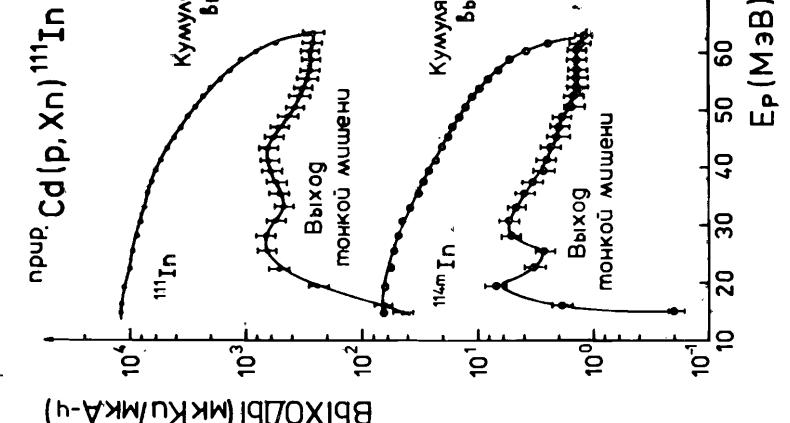


Рис.6. Выходы ^{111}In и $^{114\text{m}}\text{In}$ для тонких и толстых мишеней прир. Cd как функция энергии протонов.

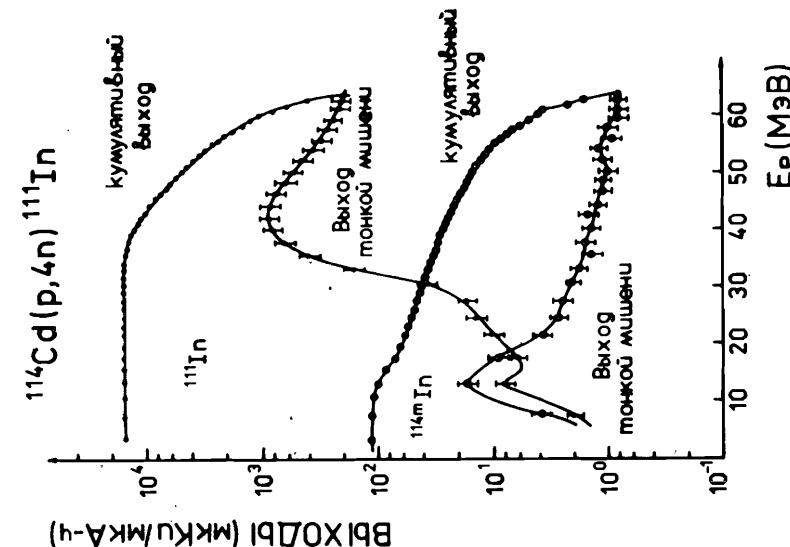


Рис.5. Выходы ^{111}In и $^{114\text{m}}\text{In}$ для тонких и толстых мишеней ^{114}Cd как функция энергии протонов.

Таблица 6

Измеренные выходы ^{111}In в различных ядерных реакциях

| Материал мишени и его обогащение (%) | Энергия налегающих частиц (MeV) | Ядерная реакция | Выход ^{111}In на конец облучения (актив-носте III) (мкКи/мкА·ч) | Продукт ^{114m}In на конец облучения (актив-носте III) (мкКи/мкА·ч) | Весовая доза от ^{114m}In дозы | Ссылка |
|--------------------------------------|---------------------------------|--------------------------|---------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------|--------------|
| птир. Cd | 15 | (p , n) | 140 | 3 | 7 | /13/ |
| | 22 | (p , $2n$) | 1035 | 0,5 | (29)* | /5/ |
| | 22 | (p , $2n$) | 1150 | 0,25 | (17) | /14/ |
| | 63 | (p , xn) | 10400 | 0,6 | (33) | наст. работа |
| ^{112}Cd (96,5) | 12 | (d , n) | 117 | 5,7 | (82) | /5/ |
| | 16 | (p , n) | 515 | 0,012 | (1) | /13/ |
| | 27 | (p , $2n$) | 6000 | 0,003 | (0,24) | /14/ |
| | 63 | (p , $3n$) | 16500 | 0,024 | (1,88) | наст. работа |
| ^{113}Cd (95,8) | 27 | (p , $4n$) | 15600 | 0,26 | (17,2) | наст. работа |
| | 32 | (^3He , n) | 2 | не определя-ется | - | /5/ |
| | 24 | (^4He , $2n$) | 64 | не определя-ется | - | /5/ |
| | 24 | (^4He , $2n$) | 64 | не определя-ется | - | /5/ |
| птир. Ag | | | | | | |

* Данные в скобках были получены экстраполяцией результатов работы /4/

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые измерены функции возбуждения реакций $^{113}\text{Cd}(p,3n)^{111}\text{In}$, $^{114}\text{Cd}(p,4n)^{111}\text{In}$ и $^{114}\text{Cd}(p,4n)^{114m}\text{In}$ при облучении мишней кадмия, обогащенных изотопами ^{113}Cd и ^{114}Cd , протонами с энергией ≤ 65 МэВ. Показана возможность получения относительно больших количеств ^{111}In при облучении этих мишней на изохронных или линейных ускорителях с энергией частиц ~ 65 МэВ.

Полученные результаты показывают, что из обогащенного кадмия ^{113}Cd можно получить ^{111}In с более высоким выходом и с относительно более низкими примесями /на один-два порядка/ ^{114m}In по сравнению с мишенью ^{114}Cd . С целью увеличения выхода ^{111}In может быть использована tandemная конструкция мишени из обогащенного / ^{113}Cd и ^{114}Cd / кадмия.

В заключение авторы выражают благодарность группе циклотрона У-240 /Киев/ за проведение облучений, В.Б.Бруданину и А.Ф.Новгородову за обеспечение работы измерительно-вычислительного центра отдела, один из нас /Э.Рураж/ выражает благодарность В.Г.Калинникову за интерес и поддержку работы.

ЛИТЕРАТУРА

- Thakur M.L. - Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 1977, 28, p.183.
- Malinin A. et al. - Radiochem. Radioanal. Lett., 1983, 59, p.213.
- Möller P., Nix J.R. - LA-UR-80-1996, L.A., 1980.
- Münzel H. - KfK-1955, Karlsruhe, 1974.
- McDonald N.S. et al. - Int.J. Appl. Rad. Isotopes, 1975, 26, p.631.
- Дмитриев П.П. и др. - Атомная энергия, 1974, 37, с.496.
- Thakur M.L., Nunn A.D. - Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 1972, 23, p.139.
- De Pasquali G., Von Goeler E., Peacock R.N. - J. Inorg. Nucl. Chem., 1959, 11, p.257.
- Neirinckx R.D. - Radiochem. Radioanal. Lett., 1970, 4, p.153.
- Helus F., Maier-Borst W. - Radiochem. Radioanal. Lett., 1973, 13, p.271.
- Wood R.A., Wakakuwa S.I., MacDonald N.S. - J.Inorg. Nucl. Chem., 1972, 34, p.3517.
- Gruverman I.J., Kruger P. - Int.. J. Appl. Radiat. Isotopes, 1959, 5, p.21.
- Brown L.C., Beets A.L. - Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 1972, 23, p.57.

14. Beavier J.E. et al. - Progr. Nucl. Medicine, 1978, 4, p.28.
15. Dahl J.R., Tilbury R.S. - Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 1972, 23, p.431.
16. Omori T. et al. - Radiochem. Radioanal. Lett., 1980, 44, p.307.
17. Otozai K. et al. - Nucl. Phys., 1966, 80, p.335.
18. Wing J., Huizenga J.R. - Phys. Rev., 1962, 128, p.280.
19. Usher O.H. et al. - Radiochim. Acta, 1977, 24, p.59.
20. Fukushima S. et al. - Nucl. Phys., 1963, 41, p.275.
21. Fukushima S. et al. - Nucl. Phys., 1965, 69, p.273.
22. Porges K.G. - Phys. Rev., 1956, 101, p.225.
23. Wasilevsky C., Vedoya M.V., Nassiff S.J. - Int. J. Appl. Rad. Isotopes, 1986, 37, p.319.
24. Smend F., Weirauch W., Schmidt-Ott W.D. - Z. Phys., 1968, 214, p.437.
25. Авчухов В.Д. и др. - Изв. АН СССР /серия физ./, 1980, 44, с.155.
26. Williamson C.F., Boujot J.P., Picard J. - CEA-R 3042, CEN, Saclay, 1966.
27. Grüter A. - Nucl. Phys., 1982, A383, p.98.
28. Гопыч П.М. и др. В кн.: Материалы совещания по программированию и математическим методам решения физических задач. ОИЯИ, Д-10,11-11264, Дубна, 1978, с.330.
29. Nelson F., Michelson D.C. - J. Chromatogr., 1966, 35, p.414.
30. Blann M. - Overlaid ALICE Code, CCO/3494-29, 1976.

Рукопись поступила в издательский отдел
28 декабря 1988 года.

Зайцева Н.Г. и др.
Функции возбуждения реакций $^{113,114}\text{Cd}(p,xn)^{111}\text{In}$
и выходы ^{111}In при облучении мишени кадмия
протонами с энергией ~65 МэВ

Методом стопки фольг измерены функции возбуждения $^{113}\text{Cd}(p,3n)^{111}\text{In}$ и $^{114}\text{Cd}(p,4n)^{111}\text{In}$ реакций в энергетическом интервале 63 — 3 МэВ. Экспериментальные результаты сравниваются с теоретическими функциями возбуждения, рассчитанными по программе ALICE, основанной на гибридной модели ядерных реакций. В том же энергетическом интервале определены эффективные сечения $\text{pri}^{114m}\text{In}$ реакций. Определены выходы ^{111}In и количество примесей ^{114m}In в тонких и толстых мишениях ^{113}Cd , ^{114}Cd и ^{nat}Cd , облученных протонами с начальной энергией 63 ± 1 МэВ. Кумулятивные выходы ^{111}In из этих мишней были равны 16,7; 15,7 и $10,4 \text{ мКи}/\mu\text{Ah}$ соответственно. Разработан метод радиохимического выделения индия в состоянии без носителя из облученного кадмия, основанный на различном поведении ионов индия и кадмия в системе катионит Даэкс 50x4 - растворы HBr различной концентрации. Определена радионуклидная чистота конечного препарата ^{111}In .

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1988

Перевод

Zaltseva N.G. et al.
Excitation Functions and Yields for ^{111}In Production
Using $^{113,114,nat}\text{Cd}(p,xn)^{111}\text{In}$ Reactions with 65 MeV
Protons

Excitation functions for the $^{113}\text{Cd}(p,3n)^{111}\text{In}$ and $^{114}\text{Cd}(p,4n)^{111}\text{In}$ reactions were measured by the stacked-foil technique in the energy range from 63 to 3 MeV. The results were compared with theoretical calculations based on the hybrid model using the well developed computer code ALICE. For the same energy range, the effective cross-sections were determined for the $^{nat}\text{Cd}(p,xn)^{111}\text{In}$ reactions. At the initial proton energy of 63 MeV for production of ^{111}In from ^{113}Cd , ^{114}Cd and ^{nat}Cd the cumulative yields were found as 16.7; 15.7 and $10.4 \text{ mCi}/\mu\text{Ah}$, respectively. The contamination of the undesired nuclide ^{114m}In was determined. The carrier-free ^{111}In activity was separated from the cadmium cyclotron-target by procedure based on ion exchange chemistry. The radionuclide purity of the final radionuclide was determined.

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