

P12-2004-209

О. Д. Маслов, А. В. Сабельников, С. Н. Дмитриев

ПОЛУЧЕНИЕ ^{225}Ac
В ФОТОЯДЕРНОЙ РЕАКЦИИ $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$
НА УСКОРИТЕЛЕ ЭЛЕКТРОНОВ —
МИКРОТРОНЕ МТ-25

Направлено в журнал «Радиохимия»

Маслов О. Д., Сабельников А. В., Дмитриев С. Н. P12-2004-209
Получение ^{225}Ac в фотоядерной реакции $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$
на ускорителе электронов — микротроне МТ-25

^{225}Ac был получен в реакции $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ на ускорителе электронов — микротроне МТ-25 ЛЯР. Радиационный выход ^{225}Ac в условиях облучения составил $550 \text{ Бк/мкА} \cdot \text{ч} \cdot \text{мг} \text{ } ^{226}\text{Ra}$. Очистку ^{225}Ac от материала мишени и сопутствующих радиоактивных примесей проводили с применением ионного обмена. Соотношение активностей $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}/^{226}\text{Ra}$ в препарате было равно $1/ \cong 2 \cdot 10^{-9} / \leq 6 \cdot 10^{-5} \text{ Бк/Бк}$.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2004

Перевод авторов

Maslov O. D., Sabelnikov A. V., Dmitriev S. N. P12-2004-209
Production of ^{225}Ac in the $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ Photonuclear Reaction
at the Electron Accelerator — МТ-25 Microtron

^{225}Ac was obtained in the $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ reaction at the electron accelerator — МТ-25 microtron of the LNR. The ^{225}Ac radiation yield under experimental conditions amounted to $550 \text{ Bq}/\mu\text{A} \cdot \text{h} \cdot \text{mg} \text{ } ^{226}\text{Ra}$. The ^{225}Ac isolation from the target material and other radioactive impurities was realized by means of ion exchange. The ratio $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}/^{226}\text{Ra}$ was estimated equal to $1/ \cong 2 \cdot 10^{-9} / \leq 6 \cdot 10^{-5} \text{ Bq/Bq}$.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2004

алюминиевой подложке. Каждую мишень помещали в отдельный цилиндрический алюминиевый контейнер диаметром 8 мм и высотой 5 мм. Контейнер закрывали алюминиевой крышкой толщиной 0,1 мм.

Контейнер размещали в центре алюминиевого держателя, открытого с одной стороны. Открытую сторону держателя плотно закрывали алюминиевой фольгой толщиной 50 мкм. Мишени облучали фотонами микротрона МТ-25 в течение 30 и 20 ч при токе электронов 15 мкА и максимальной энергии фотонов 24 МэВ. Схема облучения была такой же, как в работе [9].

По окончании облучения мишени «выдерживали» в течение 18 дней для максимального накопления ^{225}Ac (рис. 2), контролируя изменение активности актиния по его дочерним продуктам ^{221}Fr ($E_\gamma = 217,6$ кэВ, 12,5%, $T_{1/2} = 4,8$ мин) и ^{213}Bi ($E_\gamma = 439,7$ кэВ, 27,3%, $T_{1/2} = 45,6$ мин) [2].

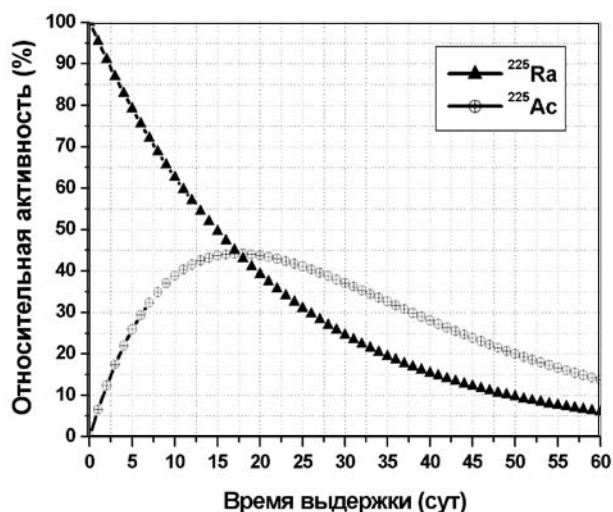


Рис. 2. Изменение активности ^{225}Ra ($T_{1/2} = 14,8$ сут) и ^{225}Ac ($T_{1/2} = 10$ сут) [2] после окончания облучения

Облученную $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ мишень растворяли в 9 М HCl , раствор упаривали до влажных солей, которые растворяли в 0,1 М HCl . Далее разделение продуктов реакции проводили методом ионообменной хроматографии по методике, прототипом которой послужила схема, описанная в работе [10]:

1. Исходный раствор 0,1 М HCl объемом 0,5 мл переносили на катионообменную колонку $0,2 \times 4$ см, содержащую катионит Dowex-50 (200–400 меш).
2. Колонку промывали раствором 9 М HClO_4 объемом 4 мл (вымываются Al, Fe, Mg, Ra, Pa, Po, Pb, Bi).
3. ^{225}Ac элюировали раствором 5 М HNO_3 объемом 1 мл.

С целью определения разницы в величинах радиационных выходов ^{225}Ra при облучении тонкой и толстой мишеней из ^{226}Ra были поставлены модельные опыты с использованием в качестве мишени хлорида свинца. Тонкая мишень содержала 9,6 мг порошка PbCl_2 (7,16 мг по Pb). Схема облучения тонкой мишени была идентична схеме облучения тонких мишеней из ^{226}Ra . Толстая мишень представляла собой стальной цилиндр с внутренним диаметром 8 мм, в который помещали порошок PbCl_2 массой 2,69 г (2,008 г по Pb). Обе мишени облучали в течение 10 мин при токе электронов 15 мкА и максимальной энергии фотонов 24 МэВ. Измерения активности мишеней производили спустя 5 сут после окончания облучения. В случае толстой мишени облученный порошок PbCl_2 извлекали из трубки, тщательно перемешивали и отбирали пробу массой 13 мг (9,7 мг по Pb), которую измеряли в тех же геометрических условиях, что и тонкую мишень. По результатам измерений были сделаны расчеты по радиационным выходам ^{203}Pb .

СПЕКТРОМЕТРИЯ ^{225}Ac

Гамма-спектрометрические измерения различных фракций и конечного препарата проводили с использованием детектора из сверхчистого Ge с разрешением 1,5 кэВ на линии 1,33 МэВ (^{60}Co). Альфа-измерения проводили на Si(Au)-детекторе площадью 0,6 см² и разрешением 16 кэВ. Источники для α -спектрометрии были изготовлены путем нанесения аликвоты, отобранной из фракции актиния, на подложку из нержавеющей стали с последующим испарением раствора. Детектирование ^{225}Ac производили по линиям с $E_\alpha = 5,581$ МэВ (1,2 %), 5,609 МэВ (1,2 %), 5,638 МэВ (4,4 %), 5,683 МэВ (1,3 %), 5,724 МэВ (3,2 %), 5,732 МэВ (10,2 %), 5,792 МэВ (8,7 %), 5,794 МэВ (18,2 %), 5,830 МэВ (50,9 %) [2].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты экспериментов представлены в табл. 1.

Результаты α -измерений препарата ^{225}Ac представлены на рис. 3. В представленном спектре фон от α -частиц с энергией 4,785 МэВ (94,4 %), 4,602 МэВ (5,55 %) [2], относящихся к ^{226}Ra , соответствовал его содержанию в препарате на уровне $6 \cdot 10^{-5}$ Бк.

При взаимодействии электронов с материалом тормозной мишени, γ -квантов с облучаемым препаратом и конструкционными материалами мишенного блока образуются нейтроны. Поэтому предельно достижимая минимальная величина отношения $^{227}\text{Ac}/^{225}\text{Ac}$ будет определяться наработкой ^{227}Ac в реакции $^{226}\text{Ra}(n, \gamma)^{227}\text{Ra} \xrightarrow{\beta^-} ^{227}\text{Ac}$. Выход данной реакции определяется конкретными условиями эксперимента. В табл. 2 даны сечения некоторых реакций на нейтронах для ^{226}Ra и ^{227}Ac .

Таблица 1. Результаты экспериментов

Облучение мишеней из ^{226}Ra				
Мишень	Содержание ^{226}Ra , мкг	Ток электронов, мкА	Время облучения, ч	Выход ^{225}Ac , Бк/ч · мкА · мг ^{226}Ra
$\text{RaSO}_4 + \text{BaSO}_4$ BaSO_4	0,65	15	30	550
$\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$	0,65	15	20	550
Облучение мишеней из PbCl_2				
Мишень	Содержание Pb, мг	Ток электронов, мкА	Время облучения, мин	Выход ^{203}Pb , Бк/ч · мкА · мг Pb
PbCl_2	7,16	15	10	34
PbCl_2	2008	15	10	28

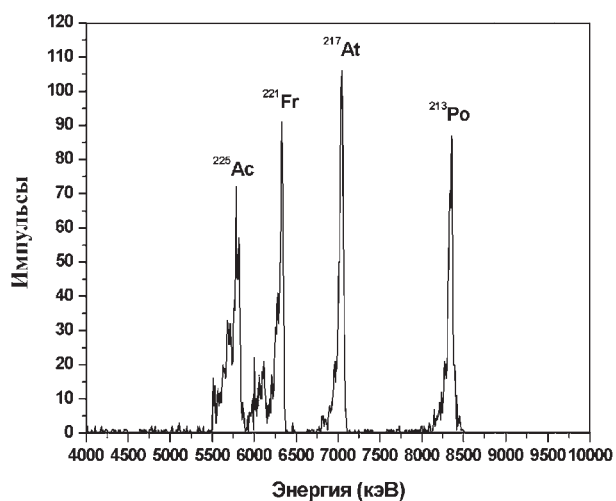


Рис. 3. Альфа-спектр ^{225}Ac

Для представленных экспериментальных условий поток тепловых нейтронов, равный $10^5 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, оценен нами с использованием реакций $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$. Исходя из данного значения, предельно достижимая величина отношения $^{227}\text{Ac}/^{225}\text{Ac}$ равна $\cong 1,8 \cdot 10^{-9}$ Бк/Бк для данных в табл. 1.

Таблица 2. Сечения некоторых реакций для ^{226}Ra и ^{227}Ac

Изотоп	$\sigma_{т.}, б$	$\sigma_{надепл.}, б$	$\sigma_{делен.}, б$	$\sigma_{делен.}, б$
	Нейтроны [11]			Фотоны [12]
^{226}Ra	$1,28 \cdot 10^1$	$2,8 \cdot 10^2$	$< 5,0 \cdot 10^{-5}$	$9,5 \cdot 10^{-4}$
^{227}Ac	$8,9 \cdot 10^2$	$1,66 \cdot 10^3$	$< 2,9 \cdot 10^{-4}$	$3,0 \cdot 10^{-3}$

Из результатов опытов видно, что чистота ^{225}Ac , получаемого по реакции $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)$ зависит от чистоты исходного ^{226}Ra и от интегрального потока фотонов.

Из модельных опытов с хлоридом свинца следует, что при переходе от тонкой мишени к толстой с массой вещества до 2 г удельный выход конечного продукта уменьшается не более, чем на 20 %. Таким образом, на микротроне МТ-25 при токе электронов 25 мкА и времени облучения 100 ч из 10 мг (1 г) ^{226}Ra можно получить $1,4 \cdot 10^7$ Бк ($1,4 \cdot 10^9$ Бк) ^{225}Ac . При использовании линейных ускорителей электронов, где энергии γ -квантов могут достигать 50 МэВ, токи электронов — 500 мкА и более, можно получать более 1 Ки ^{225}Ac менее чем за 150 ч облучения 1 г ^{226}Ra .

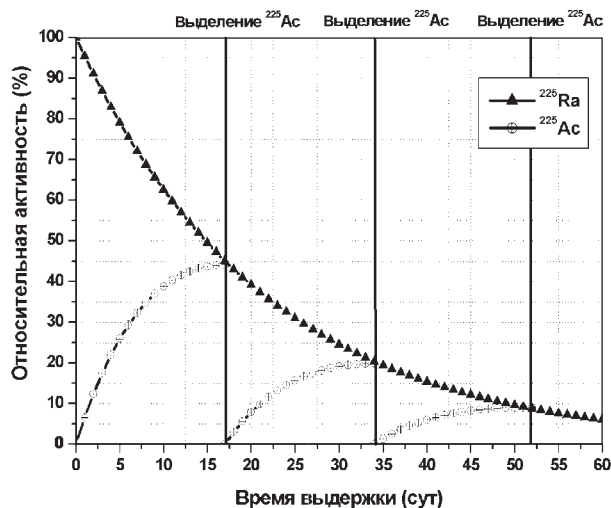


Рис. 4. Последовательное выделение ^{225}Ac из облученной мишени

Выход ^{225}Ac повышается в 1,5 раза, если производить не одну, а несколько последовательных операций по выделению его из облученной мишени (рис. 4).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработан метод получения ^{225}Ac в реакции $^{226}\text{Ra}(\gamma, n)^{225}\text{Ra}$ с выходом ^{225}Ac около 550 Бк/(мкА · ч) на 1 мг исходного ^{226}Ra .

Получен препарат ^{225}Ac с радиохимической и изотопной чистотой $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}/^{226}\text{Ra} = 1/\cong 2 \cdot 10^{-9}/\leq 6 \cdot 10^{-5}$ Бк/Бк.

В заключение авторы выражают благодарность А. Г. Белову за проведение облучений на микротроне.

ЛИТЕРАТУРА

1. Koch L. et al. // Czechoslovak Journal of Physics. 1999. V. 49. Suppl. S1. Part II. P. 817–822.
2. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения: Рекомендации МКРЗ: В 2 ч. В 4 кн. / Под ред. А. А. Моисеева. — Публикация 38-я. Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1987. 2 ч. 2 кн. С. 1–479.
3. Халкин В. А., Цупко-Сутников В. В., Зайцева Н. Г. // Радиохимия. 1997. Т. 39. № 6. С. 481–490.
4. Bonetty R., Chiesa C., Guglielmetti A. // Nucl. Phys. 1993. V. 562. P. 32.
5. Beyer G. J., Hermann E., Molnar F. // Radioch. & Radioanal. Letters. 1972. V. 12. P. 259.
6. Moellenbeck J., Schweickert H. // Nachrichten, Forschungszentrum Karlsruhe, Jahrg. 2000. V. 32. № 1–2. P. 87–90.
7. Chaudhri M. A. // Book of Abstracts. The Fifth International Conference «Modern Problems of Nuclear Physics». Samarkand, Uzbekistan, 12–15 August 2003. Samarkand, 2003. P. 236.
8. Molinet R. et al. // Proc. of 4th Int. Conf. On Nuclear and Radiochemistry. Saint-Malo. France. Sept. 8–13, 1996. Orsay, 1996. H-P2.
9. Дмитриев С. Н. и др. // Радиохимия. 1998. Т. 40, № 6. С. 533–537.
10. Гусева Л. И., Тухомирова Г. С. // Радиохимия. 1994. Т. 36, № 1. С. 51.
11. Mughabghab S. F., Divadeenam M., Holden N. E. Neutron Cross Sections from Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. <http://isotopes.lbl.gov/ngdata/sig.htm>
12. Центр данных фотоядерных экспериментов <http://cdfc.sinp.msu.ru/>

Получено 27 декабря 2004 г.

Корректор *Е. В. Сабеева*

Подписано в печать 18.02.2005.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,5. Уч.-изд. л. 0,61. Тираж 200 экз. Заказ № 54795.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www.jinr.ru/publish/