

P6-2011-112

Н. В. Аксенов*, С. А. Карамян, Г. А. Божиков, Г. Я. Стародуб,
Ю. В. Альбин, Г. К. Востокин, С. Н. Дмитриев

ПОЛУЧЕНИЕ $^{178m2}\text{Hf}$ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ^{176}Yb
УСКОРЕННЫМИ ИОНАМИ ^4He

Направлено в журнал «Applied Radiation and Isotopes»

*E-mail: nikolay.aksenov@jinr.ru

Аксенов Н. В. и др.
Получение $^{178m2}\text{Hf}$ при облучении ^{176}Yb
ускоренными ионами ^4He

P6-2011-112

Изучена возможность накопления изомера $^{178m2}\text{Hf}$ при облучении мишеней ^{176}Yb ускоренными ионами ^4He . Облучение проведено на ускорителе У-200 ЛЯР ОИЯИ при токе пучка 15 мкА и энергии ионов He^+ 35 МэВ. Предложен эффективный метод радиохимического выделения и концентрирования изотопов Hf из облученных мишеней Yb с помощью ионообменной хроматографии. Получен препарат изомера $^{178m2}\text{Hf}$ в количестве $3,17 \cdot 10^{14}$ атомов. Результаты позволяют определить выход $^{178m2}\text{Hf}$ в реакции $^{176}\text{Yb} (^4\text{He}, 2n)$ и оценить перспективы его циклотронной наработки в большом количестве при достижении высокого флюенса ионов ^4He .

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2011

Aksenov N. V. et al.
Production of $^{178m2}\text{Hf}$ by Irradiation of ^{176}Yb
with Accelerated ^4He Ions

P6-2011-112

We studied a possibility of accumulation of $^{178m2}\text{Hf}$ isomer by irradiation of ^{176}Yb with accelerated ^4He ions at internal beam of the U-200 cyclotron in Dubna. The He^+ ions reach an energy of 35 MeV with a beam intensity of 15 μA . An efficient radiochemical separation method based on anion exchange chromatography has been developed to isolate and concentrate Hf isotopes from the ytterbium irradiated target. Under described conditions $3.17 \cdot 10^{14}$ atoms of $^{178m2}\text{Hf}$ were produced. The possibilities of using the described method for production of the $^{178m2}\text{Hf}$ isomeric material via $^{176}\text{Yb} (^4\text{He}, 2n)$ reaction with increased beam current are briefly discussed.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2011

ВВЕДЕНИЕ

Использование ядерных изомеров является одним из перспективных направлений в решении задачи получения контролируемых источников энергии и гамма-излучения. Преимущества использования изомеров выводят работы по их накоплению в число актуальных прикладных исследований. Перспективы использования ядерных изомеров рассмотрены в [1]. Важно найти простой и относительно недорогой метод накопления ядерных изомеров в достаточных количествах. Одним из подходящих кандидатов является изомер $^{178m2}\text{Hf}$, который можно получать в ядерных реакциях с различными бомбардирующими частицами. Интерес к $^{178m2}\text{Hf}$ ($T_{1/2} = 31$ год) возник в связи с высокой энергией возбуждения ядра 2,5 МэВ, его большим периодом полураспада и отсутствием долгоживущих продуктов радиоактивного распада.

Получение $^{178m2}\text{Hf}$ в микрограммовых количествах возможно в ядерных реакциях расщепления Та (LANL, США) на пучке протонов с энергией 800 МэВ [2, 3] и в реакции $^{176}\text{Yb}(^4\text{He}, 2n)$ (ЛЯР ОИЯИ) [4, 5]. Последний метод является относительно простым, так как требует энергии ионов ^4He не более 10 МэВ/нуклон. Он может быть осуществлен при облучении мишени из обогащенного ^{176}Yb на циклотроне с $K = 150$. При этом возникает потребность в разработке методов выделения изотопов Hf с высокой эффективностью, а также в получении экспериментальных данных о выходе $^{178m2}\text{Hf}$ в упомянутой реакции с ^4He и в других ядерных реакциях. Эта информация может быть получена с применением методов радиохимии.

В настоящей работе проведены эксперименты по облучению мишени из ^{176}Yb на ускорителе У-200 ЛЯР ОИЯИ ионами ^4He для получения изомера $^{178m2}\text{Hf}$. Разработан эффективный метод радиохимического выделения и концентрирования изотопов Hf из облученных мишеней Yb.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Облучение ^{176}Yb . Радиоактивный изотоп $^{178m2}\text{Hf}$ получали при облучении мишеней альфа-частицами на ускорителе У-200 ЛЯР ОИЯИ с использованием реакции $^{176}\text{Yb}(^4\text{He}, 2n)^{178}\text{Hf}$. Мишень для облучения представляет собой слой оксида иттербия из обогащенного до 95 % ^{176}Yb на подложке из

алюминия. Мишени изготавливали по следующей методике. Исходный оксид иттербия переводили в нитрат. Для этого Yb_2O_3 (160 мг Yb) растворяли в 20 мл 8 моль/л HNO_3 при нагреве до 60 °С в течение 24 ч. Полученный раствор медленно упаривали до влажного осадка. Осадок растворяли в 5 мл воды и повторно упаривали. Затем нитрат иттербия растворяли в 3 мл этанола. К полученному раствору добавляли 3 мас % раствор сахарозы в объемном соотношении 1 : 1. Суспензию $\text{Yb}(\text{NO}_3)_3$ в смеси этанола, воды и сахарозы послойно наносили на алюминиевую подложку. Каждый слой толщиной ~ 50 мкг/см² высушивали и прокаливали в течение 30 мин при температуре 450 °С. Толщина мишени (по металлу) составила $\approx 8,77$ мг/см².

Облучение было проведено на ускорителе У-200 при токе пучка ≈ 15 мкА и энергии ионов He^+ 35 МэВ, измеренное полное число частиц составило $8,26 \cdot 10^{19}$. Мишень устанавливали под углом около 5° по отношению к пучку внутри вакуумной камеры циклотрона с использованием специального устройства (внутреннего пробника) для установки мишеней в позицию, соответствующую определенному радиусу орбиты, что обеспечивает искомую энергию ионов ^4He . Облучение проводили в течение 320 ч. Время облучения, толщину мишеней и энергию He^+ -частиц выбирали на основе литературных данных для максимального выхода целевого радионуклида. Среднее по функции возбуждения сечение реакции $^{176}\text{Yb}(^4\text{He}, 2n)^{178}\text{Hf}$ было ранее оценено равным около 6 мб [4].

Выделение $^{178m2}\text{Hf}$. После окончания облучения мишень «охлаждали» в течение 10 сут для снижения активности короткоживущих радионуклидов и транспортировали в радиохимическую лабораторию. Радиохимическое выделение и концентрирование изотопов Hf из облученных мишеней проводили методом анионообменной хроматографии в солянокислой и фторидных средах. Все реактивы, использованные в экспериментах, имели квалификацию ос.ч. и дополнительной очистке не подвергались. В качестве сорбентов использовали анионообменную смолу Dowex 1 × 8 (Cl^- , -100, -200, и -400, Fluka/Sigma-Aldrich, Германия). Перед использованием анионит подвергали стандартной подготовке и хранили в Cl^- -форме. Для использования анионита в F^- -форме навеску анионита оставляли в воде до полного набухания и затем промывали концентрированной HF. Затем смолу промывали водой для удаления остатков кислоты.

Облученные $^{176}\text{Yb}_2\text{O}_3$ растворяли в 5 мл 16 моль/л HNO_3 . Нерастворенный остаток отфильтровывали, и раствор выпаривали досуха, добавляли 3 мл 12 моль/л HCl и снова выпаривали. Осадок растворяли в 30 мл 12 моль/л HCl и пропускали через хроматографическую колонку (10×165 мм), заполненную анионообменной смолой Dowex 1 × 8 (-100 меш) в хлоридной форме. Коэффициенты распределения гафния в этих условиях превышают 10^3 мл/г, в то время как иттербий и дочерний лютеций не задерживаются на смоле [6]. Колонку промывали 60 мл 12 моль/л HCl. Затем

гафний элюировали 8 моль/л HCl. Al и Fe (примеси в материале подложки) при этом остаются на колонке. Для концентрирования и дополнительной очистки полученный раствор под давлением пропускали через хроматографическую колонку 6×40 мм, заполненную анионообменной смолой Dowex 1×8 (-200 меш) во фторидной форме. Для этого гафний переводили во фторидную форму, упаривая раствор досуха на фторопластовой подложке. Коэффициенты распределения гафния в этих условиях превышают 10^3 мл/г, в то время как примеси Yb и Al и Fe не задерживаются на смоле. Колонку промывали 10 мл 5 моль/л HF. Затем Hf элюировали 1 моль/л HNO₃. Скорость элюирования составляла 0,1 мл/мин. При необходимости операцию повторяли на колонке 3×15 мм с Dowex 1×8 (-400 меш). Радиохимическую чистоту и поведение Hf определяли с помощью γ -спектрометрии на γ -спектрометре GC2520 (Canberra Ind.) с HPGe-детектором с разрешением 1,5 кэВ при энергии γ -квантов 1,33 МэВ (⁶⁰Co) и программным обеспечением Genie-2000TM (Canberra Packard).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Облученные мишени содержали различные продукты реакций с основным изотопом мишени. Кроме реакций испарения нейтронов из составного ядра ¹⁷⁶Yb(⁴He, 2n) ^{178m2}Hf и ¹⁷⁶Yb(⁴He, 1n) ^{179m2}Hf присутствовали продукты прямых реакций передачи нуклонов, такие как ¹⁷⁵Yb, ¹⁷⁴Lu, ¹⁷⁷Lu и др. Выход различных реакций, происходящих при взаимодействии ионов ⁴He с мишенями ¹⁷⁶Yb и ^{nat}Lu, анализируется в [7]. В γ -спектре можно было наблюдать активности, образующиеся на примесях в мишени. В качестве подложки использовался чистый алюминий реакторного качества. Тем не менее присутствовали примеси (например, железа, меди и других элементов) в микроколичествах.

Облученные мишени перерабатывали с целью выделения изомера ^{178m2}Hf, его очистки от стабильных и радиоактивных примесей и концентрирования. Схема радиохимической очистки гафния показана на рис. 1. Как видно из рис. 2, где показано отделение ^{178m2}Hf от макроколичеств ¹⁷⁶Yb, иттербий не сорбируется в 12 моль/л HCl, в то время как гафний задерживается на колонке и может быть элюирован в форме катионов с 8 моль/л HCl. Результаты дополнительной очистки и концентрирования ^{178m2}Hf на анионообменной колонке с Dowex 1×8 представлены на рис. 3. Радиоизотопы Hf выходят в узком симметричном пике объемом 3–5 капель. После выпаривания полученного препарата на фторопластовой подложке сухой остаток визуально не наблюдали. По данным спектрометрических измерений ^{178m2}Hf был выделен с эффективностью $(85 \pm 5)\%$, а коэффициент очистки Hf от примесей составил $> 10^5$. Выделение фракции ^{178m2}Hf проведено за 4 ч без применения специального оборудования.

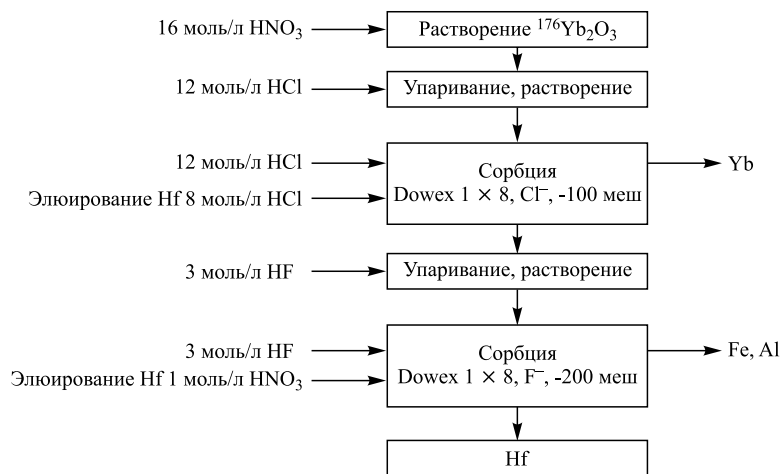


Рис. 1. Схема выделения $^{178m2}\text{Hf}$ из облученной мишени оксида ^{176}Yb

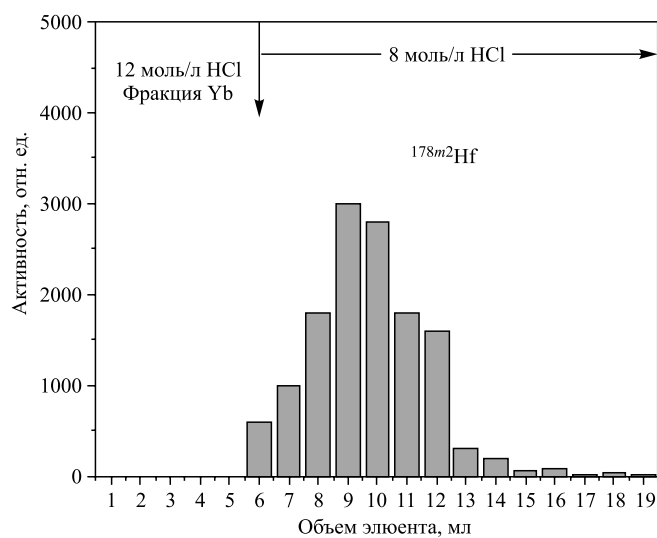


Рис. 2. Хроматограмма элюирования $^{178m2}\text{Hf}$ в 8 моль/л HCl с анионообменной колонки (Dowex 1 x 8, -100, Cl^-)

Гамма-спектр препарата гафния после выделения представлен на рис. 4. Видны интенсивные линии $^{178m2}\text{Hf}$, ^{175}Hf ($T_{1/2} = 70$ сут) и $^{179m2}\text{Hf}$ ($T_{1/2} = 25$ сут). В спектре наблюдались также γ -линии ^{172}Hf ($T_{1/2} = 1,87$ лет) и его дочернего продукта ^{172}Lu . Радионуклиды ^{172}Hf и ^{175}Hf образуются в реак-

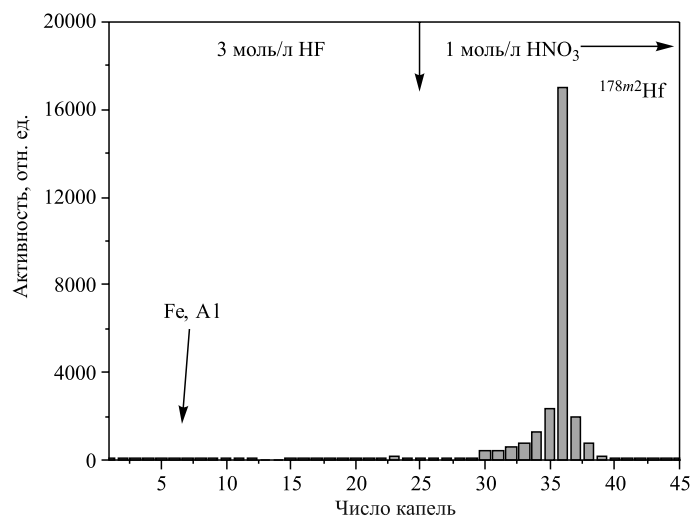


Рис. 3. Хроматограмма элюирования $^{178m2}\text{Hf}$ в 1 моль/л HNO_3 с анионообменной колонки (Dowex 1×8 , -400, F^-)

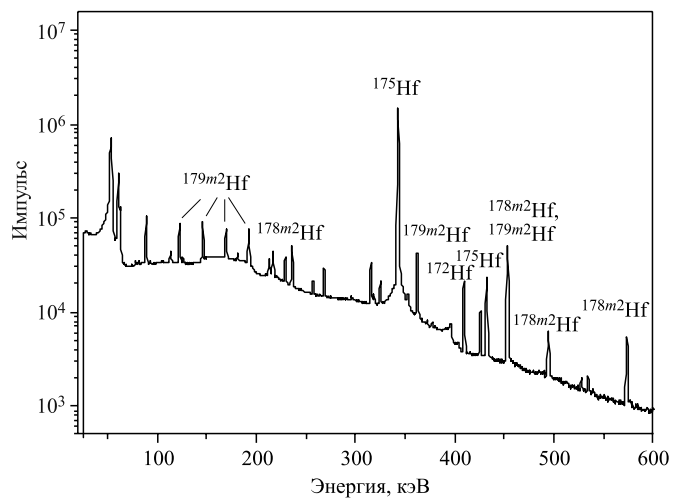


Рис. 4. γ -спектр изомера $^{178m2}\text{Hf}$. Для примера отмечены некоторые γ -линии основных продуктов

циях на более легких изотопах Yb , которые присутствуют в обогащенном веществе материала мишени ^{176}Yb . $^{179m2}\text{Hf}$ — продукт испарения одного нейтрона из составного ядра ^{180}Hf . Радионуклиды ^{175}Hf и $^{179m2}\text{Hf}$ распадаются с

относительно короткими периодами полураспада и уже после выдержки препарата в течение полугода не создают существенного γ -фона. Радионуклид ^{172}Hf более долгоживущий, и его распад ведет к накоплению ^{172}Lu , характеризующегося большим числом γ -линий. Минимизировать выход ^{172}Hf и ^{175}Hf можно с использованием мишенного материала более высокой степени обогащения. В настоящее время коммерчески доступен изотоп ^{176}Yb , обогащенный до 99%. После химической очистки активность радионуклидов примесных элементов снижена на порядки величины ($> 10^5$). Таким образом, фоновое γ -излучение препарата $^{178m2}\text{Hf}$ может быть снижено до уровня, незначительного по сравнению с основным спектром этого изомера.

Вместе с тем препарат содержит примеси стабильных изотопов Hf с $A = 177-179$, в сумме превосходящие по массе радиоактивный $^{178m2}\text{Hf}$ примерно в 100 раз. Их достаточно высокий выход следует из анализа основных характеристик ядерных реакций при взаимодействии ионов ^4He с ^{176}Yb .

Абсолютный выход изомера $^{178m2}\text{Hf}$ в изученной реакции достаточно высокий. При описанных выше условиях облучения за три месяца непрерывной экспозиции без потерь может быть накоплено радиоактивное вещество $^{178m2}\text{Hf}$ в количестве 1 мкг, т. е. $3,4 \cdot 10^{15}$ ядер или 70 мкКи. Более высокая продуктивность может быть обеспечена при условии создания специализированного ускорителя, рассчитанного на более высокий ток пучка, и при разработке мишенного узла, выдерживающего такую высокую интенсивность облучения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Карамян С. А. // ЭЧАЯ. 2008. Т. 39, вып. 4. С. 949–1014.
2. Thomas K. E. // Radiochim. Acta. 1983. V. 34. P. 135–137.
3. Taylor W. A. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 1998. V. 236, No. 1–2. P. 155–157.
4. Oganessian Y. Ts. et al. // J. Phys. G. 1992. V. 18. P. 393.
5. Szeglowski Z. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett. 1994. V. 186(3). P. 233–236.
6. Мархол М. Ионообменники в аналитической химии. Ч. 1. М.: Мир, 1985. С. 264.
7. Karamian S. A. et al. // Nucl. Instr. Meth. A. 2011. V. 646, P. 87.

Получено 1 ноября 2011 г.

Редактор *Е. В. Сабеева*

Подписано в печать 13.12.2011.

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

Усл. печ. л. 0,56. Уч.-изд. л. 0,66. Тираж 260 экз. Заказ № 57522.

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

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/