



OTRZYMYWANIE IZOTOPÓW PROMIENIOTWÓRCZYCH W CYKLOTRONIE AIC-144 W KRAKOWIE

Mirosław Bartyzel, Ryszard Misiak, Ewa Ochab, Barbara Petelenz,
Bogdan Wąs

Instytut Fizyki Jądrowej, Kraków

Abstract

OBTAINING OF RADIOACTIVE ISOTOPES IN THE AIC-144 CYCLOTRON IN KRAKÓW

The AIC-144 isochronous cyclotron has been constructed and put into operation in the Institute of Nuclear Physics. The first experiment, in which ^{11}C was produced in the $^{11}\text{B}(p,n)^{11}\text{C}$ reaction, took place on 18.12.1998. In further experiments, more radioactive isotopes were obtained in the following nuclear reactions: $^{11}\text{B}(p,n)^{11}\text{C}$, $^{\text{nat}}\text{Ni}(p,xn)^{56,57}\text{Co}$, $^{\text{nat}}\text{Rb}(p,xn)^{83,85}\text{Sr}$, $^{\text{nat}}\text{Ru}(p,xn)^{99-102}\text{Rh}$, $^{\text{nat}}\text{Cd}(p,xn)^{111}\text{In}$, $^{\text{nat}}\text{Ta}(p,xn)^{178,181}\text{W}$.

Targets of natural isotopic abundance were bombarded with the internal proton beam at energies varying from 10 to 30 MeV. Projectile energy was selected by placing targets at the appropriate acceleration radius. The applied beam currents never exceeded $5\ \mu\text{A}$.

The boron targets were prepared from molten B_2O_3 or as ionically implanted material. The rubidium was used in the form of powdered RbCl compressed on a metallic support, and other targets were pure metals. All targets were fixed in an aluminium frame attached to the water-cooled copper head of the probe, which in principle serves to beam current monitoring and will be replaced soon by a remotely-controlled dedicated target assembly.

The qualitative and quantitative analysis of activation products was performed by gamma spectrometry. Irradiation products were separated from targets or not, depending on further application. Obtaining of ^{211}At and other isotopes is planned for the future.

1. WSTĘP

Od końca 1998 roku w Instytucie Fizyki Jądrowej (IFJ) działa izochroniczny cyklotron AIC-144. Cyklotron ten jest nadal modernizowany, z czym wiąże się m.in. dalece zaawansowana budowa zautomatyzowanego dedykowanego urządzenia do otrzymywania radioizotopów.

Pierwszym izotopem promieniotwórczym otrzymanym w nowym cyklotronie był węgiel ^{11}C [1]. Reakcję $^{11}\text{B}(p,n)^{11}\text{C}$ przeprowadzono 18 grudnia 1998 roku na prowizorycznym urządzeniu do aktywacji tarcz, tj. na zaadaptowanej głowicy próbnika, służącego w zasadzie do pomiaru parametrów wiązki. Do dziś w ten sam sposób otrzymano kolejne izotopy promieniotwórcze. Energię wewnętrzną wiązki protonów, w zakresie 10-30 MeV, określano przez wybór odpowiedniej orbity akceleracji. Natężenie wiązki nigdy nie przekraczało $5\ \mu\text{A}$.

2. OTRZYMANIE $^{56,57}\text{Co}$, $^{99-102}\text{Rh}$ i ^{111}In

Izotopy otrzymane w reakcjach $^{\text{nat}}\text{Ni}(p,xn)^{56,57}\text{Co}$, $^{\text{nat}}\text{Ru}(p,xn)^{99-102}\text{Rh}$ i $^{\text{nat}}\text{Cd}(p,xn)^{111}\text{In}$ nie były wydzielane z tarcz. Po identyfikacji produktów metodą spektrometrii γ przekazano tarczy różnym grupom badawczym w IFJ.

3. OTRZYMANIE ^{11}C

Izotop ^{11}C otrzymano z tarczy B_2O_3 . Reakcję $^{11}\text{B}(p,n)^{11}\text{C}$ próbowano także wykorzystać w aktywacyjnej metodzie badania próbek implantowanych borem, którego nie można było oznaczyć innymi metodami. Celem pracy był pomiar gęstości powierzchniowej boru implantowanego jonowo do materiałów diamentopodobnych, które wytworzono w Instytucie jako potencjalne miniaturowe detektory promieniowania jonizującego.

Gęstość powierzchniową boru szacowano na podstawie pomiaru ładunku deponowanego w warunkach implantacji na masce aluminiowej, a rzeczywistą zawartość ^{11}B w warstwie modyfikowanej jonowo próbowano określić mierząc aktywność węgla ^{11}C powstającego w implantowanych płytach pod wpływem bombardowania wewnętrzną wiązką protonów o energii 14 MeV. Jako wewnętrzny wzorzec aktywacji protonowej stosowano folię tytanową, w której powstawały promieniotwórcze izotopy wanadu i skandu. Produkty aktywacji badano metodą spektrometrii γ .

4. OTRZYMANIE $^{178,181}\text{W}$

Próby otrzymania radioizotopów wolframu i wydzielenia ich z tarczy tantalowej podjęto w związku z prowadzonymi w IFJ modelowymi badaniami nad chemią pierwiastków transaktynowcowych (wolfram jest lżejszym homologiem pierwiastka 106 – Seaborgium). Ze względu na charakter badań nie było wskazane zastosowanie metody wydzielenia wymagającej użycia stężonych kwasów (HF z dodatkiem HNO_3 jak zaproponowano w pracy [2]).

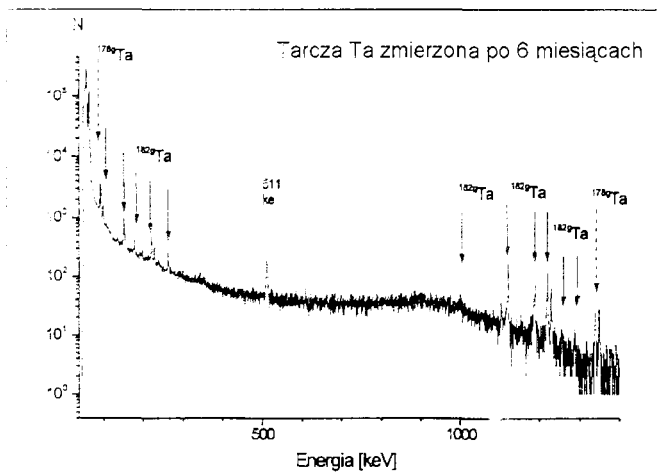
Folię z bardzo czystego tantalu o naturalnym składzie izotopowym (grubość 100 μm ; 0,012% ^{180}Ta , 99,998% ^{181}Ta) aktywowano w ciągu 2 godzin wiązką protonów o energii ok. 30 MeV i natężeniu ok. 1 μA .

Przy tej energii protonów mogą zachodzić następujące reakcje jądrowe [3]:

- (a) $^{181}\text{Ta}(p,n)^{181}\text{W}$ (121,2 d),
- (b) $^{181}\text{Ta}(p,pn)^{180g}\text{Ta}$ (8,15 h),
- (c) $^{181}\text{Ta}(p,3n)^{179m}\text{W}$ (6,7 min),
- (d) $^{181}\text{Ta}(p,3n)^{179g}\text{W}$ (38 min),

- (e) $^{181}\text{Ta}(p,4n)^{178}\text{W}$ (22 d) \rightarrow ^{178}Ta (9,25 min),
 (f) $^{180}\text{Ta}(p,3n)^{178}\text{W}$ (22 d) \rightarrow ^{178}Ta (9,25 min),
 (g) $^{181}\text{Ta}(n,\gamma)^{182g}\text{Ta}$ (114 d; reakcja z neutronami wtórnymi).

Produkty reakcji jądowych identyfikowano metodą spektrometrii γ . Pierwszy pomiar widma wykonano po 16 godzinach od zakończenia aktywacji, tj. po wygaśnięciu izotopów ^{179m}W i ^{179g}W . Izotop ^{178}W identyfikowano pośrednio, poprzez linię γ 93,3 keV jego nuklidu potomnego ^{178}Ta . Wydajność otrzymywania ^{178}W , wyznaczona z pomiarów γ -spektrometrycznych oraz podanych parametrów wiązki bombardującej, wyniosła 39 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ (1,44 MBq/ μAh).



Rys. 1. Widmo tarczy tantalowej po 6 miesiącach od zakończenia aktywacji. Czas pomiaru – 4180 s. Odległość od detektora – 0,7 cm.

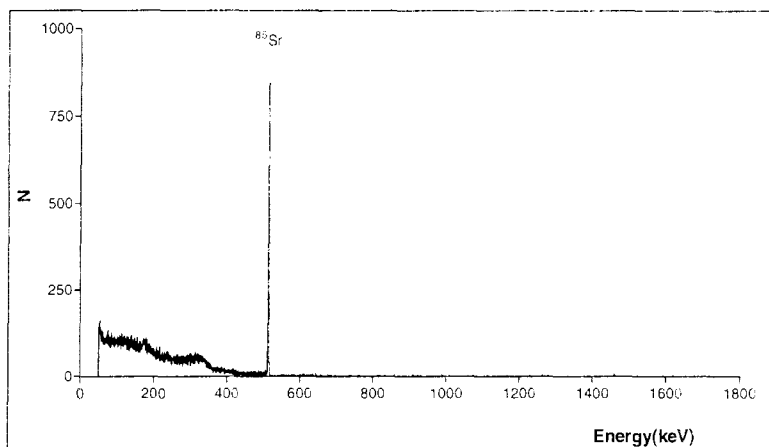
W pomiarach powtórzonych po 6 miesiącach od zakończenia aktywacji w tarczy wykryto bardzo małe ilości tantalum ^{182g}Ta (linie 100, 1189, 1121, 121 keV). Identyfikacja i pomiar ilościowy wolframu ^{181}W były utrudnione z powodu nakładania się w tym zakresie pomiarowym jego widma (linie K_{α} i K_{β} , 56-65 keV) z widmami izotopów ^{178}Ta i ^{182g}Ta .

Radioizotopy wolframu wydzielano z tarczy termochromatograficznie w strumieniu pary wodnej ($p_{\text{H}_2\text{O}}=390$ mmHg, $V_{\text{powietrza}}=19$ ml/min, $T=1160^{\circ}\text{C}$). W tych warunkach wolfram, metal o bardzo wysokiej temperaturze topnienia (3410°C) i wrzenia (5660°C), przechodzi w bardziej lotne formy tlenkowe, głównie $\text{WO}_2(\text{OH})_2$. Warunki wydzielania zaczerpnięto z pracy [4].

Wydajność wydzielania wolframu wyniosła ok. 15%. Taką niską wydajność można wytłumaczyć niekorzystnymi warunkami dyfuzji wolframu w tantalum i odpornością chemiczną obu metali. Wydajność tę można nieznacznie zwiększyć stosując tarcze z cieńszej folii [4].

5. OTRZYMANIE ^{85}Sr

Izotop strontu ^{85}Sr (64,9 d; E.C. γ 514 keV, 99%) jest ważnym składnikiem źródeł kalibracyjnych i wygodnym wzorcem wewnętrznym w radiochemicznych procedurach oznaczania izotopów ^{89}Sr i ^{90}Sr , nie emitujących promieniowania gamma. W związku z realizowanym w IFJ szerokim programem pomiarów ^{90}Sr w próbkach środowiskowych podjęto próbę otrzymania znacznika ^{85}Sr w reakcji $^{85}\text{Rb}(p,n)$.



Rys. 2. Widmo jednej z próbek eluatu zawierającego ^{85}Sr . Czas pomiaru – 699 s.

Tarcze ze sprasowanego chlorku rubidu RbCl o naturalnym składzie izotopowym (150-180 mg, 72,17% ^{85}Rb , 27,83% ^{87}Rb) bombardowano w ciągu 1 godz. wiązką protonów o energii ok. 30 MeV i prądzie ok. 1 μA .

Przy tej energii protonów mogą zachodzić następujące reakcje [3]:

- (a) $^{85}\text{Rb}(p,p2n)^{83}\text{Rb}$ (86,2 d),
- (b) $^{85}\text{Rb}(p,pn)^{84m}\text{Rb}$ (20,5 min),
- (c) $^{85}\text{Rb}(p,pn)^{84g}\text{Rb}$ (32,8 d),
- (d) $^{85}\text{Rb}(p,n)^{85}\text{Sr}$ (64,8 d),
- (e) $^{85}\text{Rb}(p,3n)^{83}\text{Sr}$ (32,4 h) \rightarrow ^{83}Rb (86,2 d),
- (f) $^{85}\text{Rb}(p,n)^{85}\text{Sr}$ (64,8 d),
- (g) $^{87}\text{Rb}(p,3n)^{85}\text{Sr}$.

Skład tarcz analizowano stosując metodę spektrometrii γ . Po trzech dniach od zakończenia aktywacji w tarczach wykryto ^{83}Rb , ^{83}Sr , ^{85}Sr , ^{131}Ba i ^{133}Ba . Izotopy baru najprawdopodobniej pochodziły z reakcji $^{133}\text{Cs}(p,n)$ i $^{133}\text{Cs}(p,3n)$ na śladowych zanieczyszczeniach tarczy stabilnym izotopowo cezem.

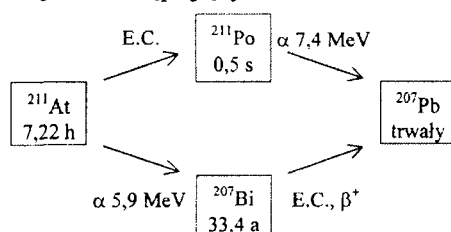
Po pierwszej serii pomiarów tarcze studzono dalej przez 6-8 tygodni, w celu pozbycia się strontu ^{83}Sr . Następnie rozpuszczano je w wodzie, odpa-

rowywano do sucha i zadawano 5 M HNO₃. Roztwór ponownie odparowywano do sucha i zadawano mieszaniną 3 M HNO₃+0,1 M (COOH)₂. Otrzymany roztwór naniesiono na kolumnę chromatograficzną wypełnioną żywicą bis-t-Butyl-cis-Dicyclohexano-18-Crown-6 (EiChroM, USA).

Rubid stabilny i ⁸³Rb eluowano z kolumny mieszaniną 3 M HNO₃+0,1 M (COOH)₂. Równocześnie wymywały się też bezośnikowe radioizotopy baru. Bezośnikowy ⁸⁵Sr eluowano wodą podwójnie destylowaną. Wydajność chemiczna procedury wyniosła ok. 97%.

6. PLANY NA NAJBLIŻSZĄ PRZYSZŁOŚĆ: OTRZYMANIE ²¹¹At

Preparaty znakowane astatem ²¹¹At znajdują zastosowanie m.in. do leczenia nowotworów gałki ocznej in situ. Schemat rozpadu promieniotwórczego astatu ²¹¹At jest następujący:



Nuklid ²¹¹At powstaje w reakcji jądrowej ²⁰⁹Bi(α,2n)²¹¹At. Do początku lat dziewięćdziesiątych niewielkie ilości astatu ²¹¹At otrzymywano w IFJ z tlenku bizmutu Bi₂O₃ (t_{topn}=825°C), bombardowanego w cyklotronie U-120 wyprowadzoną wiązką cząstek α o energii 26-27 MeV [5]. Obecnie praca z wiązką wewnętrzną w nowym cyklotronie i zmiana warunków chłodzenia spowodowały konieczność zastąpienia tlenku Bi₂O₃ tarczą z metalicznego bizmutu (100% ²⁰⁹Bi, t_{topn}=271°C), a podkładki platynowej miedzianą, która lepiej odprowadza ciepło. Po wielu próbach udało się autorom dobrać warunki, w których warstwa bizmutu o grubości ok. 30 μm (ok. 30 mg cm⁻²) dobrze przylega do miedzianej podkładki.

Miedziana podkładka o grubości 0,1 mm była mocowana w uchwycie aluminiowym przytwierdzonym do miedzianej rury chłodzonej od wewnątrz wodą. Tarczę testowano przez bombardowanie jej w ciągu 1 godziny wiązką protonów o energii 30 MeV i natężeniu 1 μA. W tych warunkach zachodziła konieczności odprowadzenia 30 W strumienia ciepła z powierzchni 0,8 cm². Test wypadł pomyślnie, tzn. na tarczy i wokół niej nie było śladów spływania stopionego bizmutu (tarczę z izotopami polonu ²⁰⁶Po i ²⁰⁷Po, powstałymi w reakcjach ²⁰⁹Bi(p,xn), wykorzystano w innych eksperymentach).

W celu wyeliminowania niektórych mankamentów metody stosowanej dawniej przeprojektowano i wykonano nową aparaturę do wydzielania ²¹¹At

z tarczy. Najistotniejszą zmianą była zmiana parametrów pracy pieca z wkładem kwarcowym oraz zastosowanie pułapki kriogenicznej do sorpcji wydzielanego ^{211}At w temperaturze ok. -50°C [6]. Dzięki tym zmianom udało się zapewne uzyskać większą koncentrację astatu w dobrze określonym i łatwo dostępnym odcinku aparatury (rurka polipropylenowa), co ułatwi ilościowe wydzielenie znacznika i wykorzystanie go do dalszych syntez.

7. PODSUMOWANIE

Mimo prowizorycznych warunków aktywacji otrzymano ostatnio kilka ważnych znaczników izotopowych powstających w reakcjach z protonami. Szczególnie użyteczne było otrzymanie bardzo czystego izotopu strontu ^{85}Sr . Prace będą kontynuowane.

Autorzy dziękują Załodze cyklotronu AIC-144 za stałą współpracę i aktywacje tarcz.

LITERATURA

- [1]. Bakewicz E., Bartyzel M., Doruch H., Ochab E., Petelenz B.: Otrzymanie izotopu węgla ^{11}C z tarczy B_2O_3 bombardowanej wewnętrzną wiązką protonów w cyklotronie AIC-144 w IFJ. Raport IFJ nr 1814/C, Kraków 1998.
- [2]. Neirinckx R.D., Ku T.H., Holman L., Jones A.G., Richards P.: Production and purification of tungsten-178. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 30, 341-343 (1979).
- [3]. Dmitriev P.P.: Vыход радионуклидов в реакциях с протонами, дейтронами, альфа-частицами и гелием-3. *Справочник. Энергоатомиздат, Moskva* 1986.
- [4]. Bayar B., Novgorodov A.F., Vocilka I., Zaitseva N.G.: Fast gas-thermochromatographic separation of radioactive elements. III. Production and thermochromatographic behaviour of volatile oxides and hydroxides of radioactive tungsten. *Radiochem. Radioanal. Letters*, 22, 53 (1975).
- [5]. Mazgaj Z., Mikulski J.: Określenie wydajności wydzielania ^{211}At z tarczy Bi_2O_3 aktywowanej cząstkami alfa w funkcji temperatury. Raport IFJ nr 1568/C, Kraków 1991.
- [6]. Koziorowski, J., Lebeda O., Weinreich R.: A cryotrap as flowreactor for synthesis of ^{211}At labelled compounds. *Appl. Radiat. Isot.*, 50, 527-529 (1999).