

УСТАНОВКА ДЛЯ ИЗВЛЕЧЕНИЯ РАДИОИЗОТОПОВ РЕНИЯ
ИЗ ОБЛУЧЕННОЙ ВОЛЬФРАМОВОЙ МИШЕНИ© 2021 г. В. А. Загрядский^а, Я. М. Кравец^а, С. Т. Латушкин^а, Т. Ю. Маламут^а,
В. И. Новиков^а, А. В. Рыжков^а, Т. А. Удалова^{а,*}, В. Н. Унежев^а, Д. Ю. Чувилин^а^а Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”
Россия, 123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1

*e-mail: udalova_ta@nrcki.ru

Поступила в редакцию 16.02.2021 г.

После доработки 26.02.2021 г.

Принята к публикации 04.03.2021 г.

Разработана установка для экспрессного термического извлечения радиоизотопов Re из облученной вольфрамовой мишени. Работа установки протестирована с помощью вольфрамовой мишени, предварительно облученной дейтронами на циклотроне У-150 НИЦ “Курчатовский институт”. Приводится описание конструкции установки и принцип ее работы. Показано, что за один двухэтапный цикл “прокаливание – возгонка” на приемную площадку сборника удается собрать не менее 89% активности Re из W-мишени. Установка может использоваться для выделения изотопа ¹⁸⁶Re, образующегося при облучении протонами или дейтронами циклотронных мишеней из ¹⁸⁶W.

DOI: 10.31857/S0032816221040297

ВВЕДЕНИЕ

Благодаря удобным ядерно-физическим свойствам и способности легко связываться с органическими молекулярными комплексами радиоизотоп ¹⁸⁶Re чрезвычайно востребован в ядерной медицине для терапии онкологических заболеваний и хронических воспалительных заболеваний суставов [1]. Изотоп ¹⁸⁶Re может быть наработан на циклотроне путем облучения мишени из ¹⁸⁶W протонами или дейтронами [2].

Технологический процесс производства радиоизотопа ¹⁸⁶Re предполагает разработку нескольких технологических операций: изготовление и облучение мишени, извлечение ¹⁸⁶Re из облученной вольфрамовой мишени и возврат ¹⁸⁶W в технологический процесс. Технологическая операция извлечения ¹⁸⁶Re из облученной вольфрамовой мишени может быть осуществлена либо радиохимическими методами (сорбционной или экстракционной хроматографией) [3–5], либо термическим методом [6–8]. Термический метод включает два этапа. На первом этапе при нагревании в кислородной среде вольфрам и рений переводят в окисные соединения. При этом оксиды рения (в степенях окисления Re⁺⁴ (ReO₂), Re⁺⁶ (ReO₃), Re⁺⁷ (Re₂O₇) [9–11]) имеют при одних и тех же температурах более высокую летучесть, чем оксиды вольфрама. Так, равновесное давление газовой фазы 0.1 Торр достигается для ReO₃

при 474°C, для Re₂O₇ при 189°C, а для WO₃ – при 1204°C [12]. Это позволяет на втором этапе при относительно невысоких температурах газифицировать и отделить оксиды рения от вольфрамовой матрицы. В работе [8] реализован термический метод разделения в варианте, основанном на транспорте выделившихся молекул газовой фазы в потоке газа-носителя вдоль поверхности трубки, температура которой уменьшается по ходу движения газа. Использование газа-носителя оправдано для стационарных установок, работающих в непрерывном режиме. При необходимости периодически получать небольшие количества Re для исследовательских целей эта задача может быть решена более просто.

В данной работе создана и протестирована установка для получения радиоизотопов рения, основанная на термическом методе. С помощью разработанной установки можно осуществлять газификацию целевых продуктов путем окисления Re и выхода его окислов из W в газовую фазу. Конструктивная особенность установки состоит в том, что она позволяет собирать практически весь Re на приемную площадку сборника за один двухэтапный цикл “прокаливание – возгонка” без использования газа-носителя. В разработанной установке применены конструктивные элементы и подобраны температурные режимы, обеспечивающие высокий выход рения из вольфрамовой мишени.

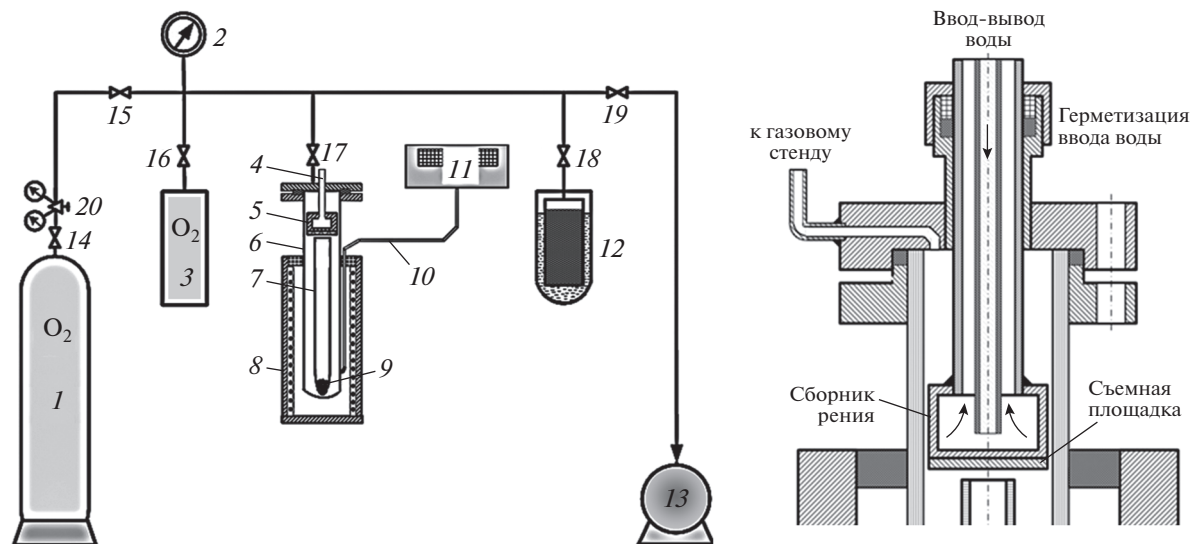


Рис. 1. Блок-схема установки для выделения изотопов Re из облученной вольфрамовой мишени. 1 – баллон с кислородом; 2 – датчик давления АИР-20-М2-ДА; 3 – мерная емкость 1.9 л; 4 – коаксиальные трубки для подачи и отвода охлаждающей воды; 5 – сборник паров оксидов Re со съемной площадкой; 6 – внешняя кварцевая ампула ($D_{\text{наруж}} = 36$ мм, $d_{\text{внутр}} = 31$ мм, $l = 300$ мм); 7 – внутренняя кварцевая ампула ($D_{\text{наруж}} = 18$ мм, $d_{\text{внутр}} = 14$ мм, $l = 130$ мм); 8 – термостат-нагреватель; 9 – облученный порошок W, содержащий Re; 10 – термопара хромель–алюмель; 11 – блок измерения температуры ИРТ/М2; 12 – угольная ловушка в сосуде Дьюара; 13 – форвакуумный насос НВР-5Д; 14–19 – вентили; 20 – газовый редуктор GSE. Справа приведено увеличенное изображение верхней части ампульной системы со сборником и коммуникациями.

КОНСТРУКЦИЯ УСТАНОВКИ

Центральными элементами установки, блок-схема которой представлена на рис. 1, являются две коаксиальные кварцевые ампулы 6 и 7, подключаемые к газовому стенду, термостат 8 и охлаждаемый водой сборник соединений рения 5.

Вакуумное уплотнение, обеспечивающее подсоединение внешней кварцевой ампулы к газовому стенду, осуществлялось через переходник из алюминиевого сплава Д16. Один конец переходника приклеивался к ампуле эпоксидной смолой ЭД-6, а другой подсоединялся к фланцам стенда с использованием прокладок. Такое устройство упрощает процесс герметизации, поскольку допускает менее жесткие требования к качеству кварцевой ампулы (к степени ее эллипсности, шероховатости поверхности) и снижает опасность раскалывания ампулы в процессе уплотнения.

Введение внутрь внешней ампулы 6 специального охлаждаемого водой сборника 5, используемого для улавливания оксидов Re со стенок ампулы при возгонке, обеспечило преимущество такой схемы выделения перед смыванием оксидов Re непосредственно со стенок ампулы. Сборник был изготовлен в форме полого медного цилиндра. На поверхности сборника, обращенной к потоку возгоняемых оксидов Re, на расстоянии 1 мм от выхода внутренней ампулы 7 помещалась съемная площадка из сплава Д16, представляющая собой

диск $\varnothing 3$ см, толщиной 2 мм, навинчивающийся на основное тело сборника. К цилиндру подводились две коаксиальные трубки для подачи и отвода охлаждающей воды. Коаксиальная конструкция позволила осуществить подведение воды для охлаждения сборника с помощью одного вакуумного ввода. Преимущество такого конструктивного решения состоит в локализации продуктов на малой поверхности площадки сборника (7 см^2) и возможности обеспечить поддержание достаточно низкой для конденсации продуктов температуры сборника в непосредственной близости от внутренней ампулы, нагретой до высокой температуры возгонки ($\geq 400^\circ\text{C}$). Конструкция установки включает передвижной термостат-нагреватель, что позволяет осуществлять поэтапное изменение температурного режима в ампуле с W-мишенью без отсоединения системы от газового стенда.

Работа установки включает два последовательных этапа. На рис. 2 представлен фрагмент установки, приведенной на рис. 1, иллюстрирующий этапы ее работы.

На первом этапе (рис. 2, I) производится окисление компонентов и их прокаливание (при $T_1 \geq 1000^\circ\text{C}$), обеспечивающее диффузию оксидов Re из W-мишени в газовую фазу.

На втором этапе (рис. 2, II) производится возгонка оксидов Re (при $T_2 \approx 300\text{--}500^\circ\text{C}$) со стенок

ампулы и конденсация их на съемную площадку сборника.

РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕСТИРОВАНИЯ РАБОТЫ УСТАНОВКИ

Для тестирования установки был использован порошок металлического природного вольфрама, содержащий долгоживущий радиоизотоп ^{183}Re ($T_{1/2} = 70$ дней) с интенсивной γ -линией с $E_\gamma = 162$ кэВ и $K_\gamma = 22\%$, которую использовали в качестве индикатора для оценки места и количества извлеченного из вольфрама рения. Образец вольфрама с ^{183}Re был наработан в результате облучения природного вольфрама дейтронами энергией ~ 30 МэВ и использован для тестирования после нескольких месяцев выдержки. Измерение интенсивности γ -линии с $E_\gamma = 162$ кэВ ^{183}Re в составе соединений рения проводили с помощью гамма-спектрометра фирмы ORTEC с детектором из сверхчистого германия.

Образец облученного природного вольфрама массой 598 мг помещали в кварцевую ампулу 7 (рис. 1), которую устанавливали вертикально на поверхность детектора, после чего проводили измерение интенсивности γ -линии с $E_\gamma = 162$ кэВ (площади пика полного поглощения γ -квантов) от исходного ^{183}Re в образце вольфрама. Затем кварцевую ампулу 7 с образцом вольфрама помещали в установку для последующего извлечения рения (рис. 1).

Первый этап

Окисление компонентов проводили при погружении в нагреватель нижнего конца ампулы (рис. 2, I). Перед началом эксперимента вакуумный стенд и ампульное устройство (рис. 1) откачивали с помощью форвакуумного насоса 13 до давления $\approx 3 \cdot 10^{-2}$ Торр и угольной ловушки 12 до давления $< 10^{-3}$ Торр. Затем емкость 3 и ампульное устройство заполняли кислородом из баллона 1 до давления ≈ 100 кПа. Заполнение кислородом осуществляли при открытых вентилях 14–17 и закрытых вентилях 18, 19 из баллона 1 с помощью редуктора 20. После этого на термостат-нагреватель 8 подавали напряжение.

При достижении температуры $T_1 \approx 480^\circ\text{C}$ начиналось горение W, продолжавшееся ≈ 5 мин. Затем в течение ~ 1 ч проводили прокаливание образца при температуре $1000\text{--}1050^\circ\text{C}$. При этом измерение распределения температуры по высоте ампулы проводили с помощью 5 термопар в керамических оболочках, устанавливаемых вдоль стенок ампулы на разной высоте. После прокаливания и остывания кварцевую ампулу 7 извлекали из ампульного устройства для измерения распределения интенсивности γ -линии $E_\gamma = 162$ кэВ ^{183}Re в составе соединений рения, сконденсиро-

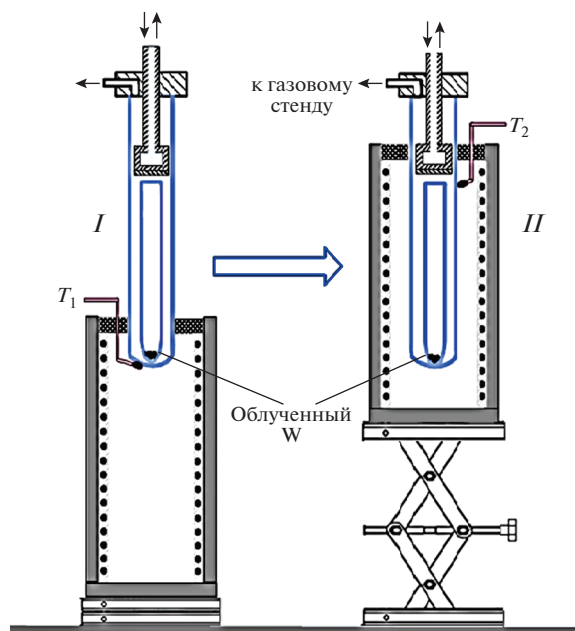


Рис. 2. Иллюстрация двух этапов (I, II) работы установки: I – окисление W и Re и прокаливание; II – возгонка окислов Re со стенок ампулы.

ванных по высоте ампулы 7. Измерение проводили путем сканирования ампулы с шагом 5 мм над узкой щелевой диафрагмой (5 мм) в свинцовом экране, расположенном на поверхности детектора. Свинцовый экран толщиной 5 мм полностью экранировал ампулу (γ -линию $E_\gamma = 162$ кэВ ^{183}Re) вне щелевой диафрагмы.

Результаты измерений температуры вдоль стенок ампулы и распределение скорости счета в пике полного поглощения γ -квантов от сконденсировавшихся на стенках ампулы соединений рения представлены на рис. 3.

На основании измеренных распределений (рис. 3) было установлено, что при избранных условиях прокаливания зона конденсации соединений Re располагается между уровнями от 6 см до 12 см по высоте ампулы, что соответствует температурам стенки ампулы от 100 до 500°C .

Второй этап

Возгонку оксидов рения осуществляли при полном погружении внутренней ампулы в термостат-нагреватель (рис. 2, II). Сначала устанавливали термопару 10 (рис. 1) на уровне верхнего среза внутренней ампулы 7 и поднимали термостат-нагреватель 8 так, чтобы внутренняя ампула 7 находилась внутри него, а зазор между концом ампулы 7 и поверхностью сборника 5 составлял 1 мм (рис. 2, II). Угольной ловушкой 12 (рис. 1) откачивали объем ампул до давления $< 10^{-3}$ Торр и включали термостат-нагреватель. В такой геомет-

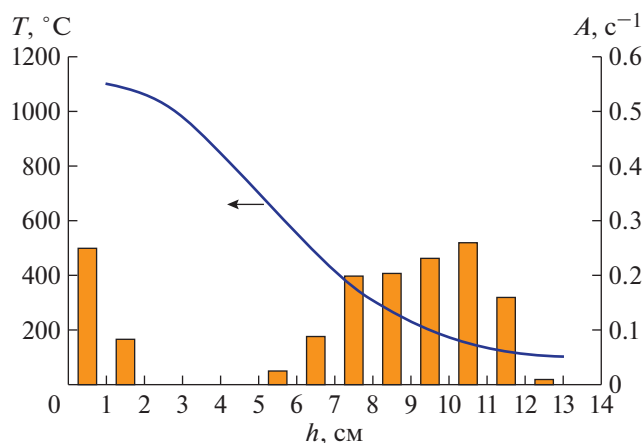


Рис. 3. Распределения по высоте ампулы 7 температуры и интенсивности γ -линии $E_\gamma = 162$ кэВ ^{183}Re (по результатам 1-го этапа). T – температура стенки ампулы, A – скорость счета в пике полного поглощения.

рии температуру верхнего конца ампулы поднимали до $T_2 = 500^\circ\text{C}$, расход охлаждающей воды составлял 0.35 л/мин, а ее температура равнялась 11°C . Возгонку паров оксидов Re и осаждение их на сборник проводили в течение 2 ч. После остывания установки извлекали сборник 5 и измеряли интенсивность γ -линии $E_\gamma = 162$ кэВ ^{183}Re от сборника. Сравнение результатов измерения интенсивности γ -линии $E_\gamma = 162$ кэВ от исходного ^{183}Re в образце вольфрама и от ^{183}Re на сборнике показало, что установка позволяет извлечь $\approx 89\%$ активности рения из облученной вольфрамовой мишени. Причем высаженные на сборник соединения рения практически полностью смываются со сборника дистиллированной водой, что удобно для последующего его применения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана, изготовлена и протестирована экспериментальная установка для извлечения радиоизотопов рения из облученной вольфрамовой мишени. Показано, что в созданной установке за один двухэтапный цикл в режиме: “окисление +

+ прокалка” при 1000°C в течение 1 ч (первый этап) и “возгонка” при 500°C в течение 2 ч (второй этап), на приемную площадку сборника удается собрать $\approx 89\%$ активности Re из W-мишени.

Созданная установка может использоваться для экспрессного выделения изотопа ^{186}Re , образующегося при облучении протонами или дейтронами циклотронных мишеней из ^{186}W .

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при поддержке НИЦ “Курчатовский институт”, приказ № 1918 от 24.09.2020.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Зверев А.В., Крылов В.В., Ханов А.Г., Кочетова Т.Ю. // РМЖ. Медицинское обозрение. 2017. № 1. С. 36.
2. Загрядский В.А., Латушкин С.Т., Маковеева К.А., Маламут Т.Ю., Новиков В.И., Оглоблин А.А., Унежнев В.Н. // Атомная энергия. 2020. Т. 128. Вып. 3. С. 151.
3. Zhang X., Li Q., Li W., Sheng R., Shen S. // Applied Radiation and Isotopes. 2001. V. 54. P. 89.
4. Moustapha M.E., Ehrhardt G.J., Smith C.J., Szajek L.P., Eckelman W.C., Jurisson S.S. // Nuclear Medicine and Biology. 2006. V. 33. P. 81.
5. Zhu Z., Wang X.Y., Wu H.Y., Liu Y.F. // J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 1997. V. 221. № 1–2. P. 199.
6. Alekseev I.E., Lazarev V.V. // Radiochemistry. 2006. V. 48. № 5. P. 497.
7. Novgorodov A.F., Bruchertseifer F., Brockmann J., Lebedev N.A., Rosch F. // Radiochim. Acta. 2000. V. 88. P. 163.
8. Байер Б., Возилка Н., Зайцева Н.Г., Новгородов А.Ф. // Радиохимия. 1974. Т. 16. № 6. С. 894.
9. Борисова Л.В. Аналитическая химия рения. М.: Наука, 1974.
10. Лидин Р.А., Андреева Л.Л., Молочко В.А. Константы неорганических веществ: Справочник. М.: Дрофа, 2007.
11. Лидин Р.А., Андреева Л.Л., Молочко В.А. Реакции неорганических веществ: Справочник. М.: Дрофа, 2007.
12. Ефимов А.И., Белорукова Л.П., Василькова И.В., Чечев В.П. Свойства неорганических соединений: Справочник. Л.: Химия, 1983.