

УДК 539.122.03

Получение ^{109}Cd при облучении ^{107}Ag нейтронами в реакторе

БЕДА А. Г., ДАВЫДОВ А. В., ЛЯХОВ А. В., ЩЕКИН К. И.

Одним из наиболее широко используемых в рентгенорадиометрическом анализе радионуклидов является ^{109}Cd . К его достоинствам относятся большой период полураспада — 452 сут [1] и простой спектр излучения, содержащий сильно конвертированное γ -излучение дочернего ядра ^{109}Ag энергией 88 кэВ и рентгеновское излучение, сопровождающее процесс внутренней конверсии (линии K -серии последнего имеют энергию ~ 22 кэВ). ^{109}Cd применяется для количественного и качественного анализа веществ, содержащих элементы с атомным номером от 22 до 44 (при возбуждении рентгеновским излучением K -серий исследуемых элементов) и от 74 до 92 (при возбуждении L -серий). При достаточно интенсивных источниках ^{109}Cd возможно также и возбуждение K -серий атомов тяжелых элементов γ -излучением энергией 88 кэВ.

В настоящее время ^{109}Cd в нашей стране производится исключительно путем циклотронного облучения серебра с использованием ядерных реакций $^{109}\text{Ag}(p, n)^{109}\text{Cd}$ или $^{109}\text{Ag}(d, 2n)^{109}\text{Cd}$. Однако облучение серебра на циклотроне для получения ^{109}Cd требует большого времени, что сильно ограничивает возможности широкого внедрения этого нуклида в рентгенорадиометрический анализ. Кроме того, источники из ^{109}Cd циклотронного изготовления очень дороги, а поскольку они по своим физическим свойствам являются наиболее подходящими для рентгенорадиометрического анализа, то любой новый дешевый способ изготовления источников ^{109}Cd в более широком масштабе чрезвычайно важен.

В последние годы появилась возможность использовать для получения радионуклидов реакторы с высокой плотностью потока нейтронов (вплоть до $2 \cdot 10^{15}$ $1/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$). В таком реакторе можно с большой эффективностью получать ^{109}Cd , облучая ^{107}Ag с использованием реакции двойного захвата нейтронов $^{107}\text{Ag}(n, \gamma)^{108}\text{Ag} \rightarrow ^{108}\text{Cd}(n, \gamma)^{109}\text{Cd}$.

Оценка возможностей метода. Известно, что природное серебро представляет собой смесь ^{107}Ag (51,3%) и ^{109}Ag (48,7%). Для получения достаточной активности ^{109}Cd можно облучать природное серебро с последующим выделением образующегося кадмия, но есть две причины, по которым работать с таким серебром нежелательно. При облучении серебра, кроме указанной выше реакции, происходит также реакция $^{109}\text{Ag}(n, \gamma)^{110}\text{Ag}$. В результате ее образуется ^{110}Ag как в основном состоянии, из которого с периодом полураспада 24 с [2] превращается в ^{110}Cd , так и в метастабильном, имеющем период полураспада 253 сут [3]. В конечном итоге оба процесса распада ^{110}Ag

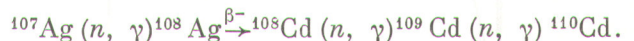
приводят к образованию излишнего количества кадмия, снижающего удельную активность будущего продукта — ^{109}Cd , причем основную роль здесь играет распад через короткоживущее основное состояние ^{110}Ag . Например, при плотности потока нейтронов $2 \cdot 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ и длительности облучения ~ 100 сут 75% ^{109}Ag превращается в ^{110}Cd . Что же касается распада ^{110}Ag , идущего через долгоживущее метастабильное состояние, то он характеризуется высокой γ -постоянной ($K_\gamma = 14,25$ Р· $\text{см}^2/\text{ч}$ [4]). В связи с этим могут возникнуть большие трудности в обеспечении безопасных условий при радиохимической обработке облученных образцов. Таким образом, для облучения следует брать серебро, обогащенное ^{107}Ag с минимальным содержанием ^{109}Ag .

Накопление ядер ^{109}Cd при облучении ^{107}Ag тепловыми нейтронами в реакторе определяется следующей формулой (при этом захватом нейтронов ^{108}Ag пренебрегаем из-за малого времени его жизни):

$$n_{109}(t) = n_{107} \frac{J \sigma_{107} \sigma_{108}}{\sigma_{107} - \sigma_{108}} \left[\frac{1}{J \sigma_{109} + \lambda_{109} - J \sigma_{108}} \times \right. \\ \times (e^{-J \sigma_{108} t} - e^{-(J \sigma_{109} + \lambda_{109}) t}) - \frac{1}{J \sigma_{109} + \lambda_{109} - J \sigma_{107}} \times \\ \times (e^{-J \sigma_{107} t} - e^{-(J \sigma_{109} + \lambda_{109}) t}) \left. \right] = n_{107} \times \\ \times \frac{10^{24} \sigma_{107} \sigma_{108}}{\sigma_{107} - \sigma_{108}} F(t) = 1,28 \cdot 10^{-4} n_{107} F(t), \quad (1)$$

где $n_{109}(t)$ — число ядер ^{109}Cd , накопившихся за время облучения t ; n_{107} — исходное число ядер ^{107}Ag ; J — поток тепловых нейтронов; σ_{107} , σ_{108} , σ_{109} — сечения поглощения тепловых нейтронов нуклидами ^{107}Ag , ^{108}Cd и ^{109}Cd соответственно; λ_{109} — постоянная распада ^{109}Cd .

Для определения удельной активности образующегося ^{109}Cd надо рассмотреть накопление в образце других изотопов кадмия. Если облучается серебро, обогащенное ^{107}Ag выше 99%, то количество кадмия, образующееся после поглощения нейтронов в ^{109}Ag , можно не учитывать, так как его доля составит не более 2—3% общего количества кадмия, образующегося в серебре. Каждый акт такого захвата нейтронов ядрами ^{107}Ag в конечном счете приводит к образованию изотопов кадмия в соответствии с цепочкой превращений:



Причем общее число ядер кадмия n_{Cd} , накапливающееся за время облучения t , определяется формулой

$$n_{\text{Cd}} = n_{107} [1 - \exp(-J \sigma_{107} t)]. \quad (2)$$

Из формул (1) и (2) получаем следующее выражение для удельной активности $C^{109}\text{Cd}$ в выделенной из облученного образца кадмиевой фракции:

$$C = \frac{\lambda_{109} N_A J \sigma_{107} \sigma_{108} \left[\frac{1}{J \sigma_{109} + \lambda_{109} - J \sigma_{108}} (e^{-J \sigma_{108} t} - e^{-(J \sigma_{109} + \lambda_{109}) t}) - \frac{1}{J \sigma_{109} + \lambda_{109} + J \sigma_{107}} (e^{-J \sigma_{107} t} - e^{-(J \sigma_{109} + \lambda_{109}) t}) \right]}{A (\sigma_{107} - \sigma_{108}) (1 - e^{-J \sigma_{107} t})} = 3,32 f(t) \text{ Ки/г}, \quad (3)$$

250

где N_A — число Авогадро, A — средняя атомная масса образовавшихся изотопов кадмия.

Если облучать ^{107}Ag в реакторе СМ-2 в штатной ампуле внутренним диаметром 5 мм, то при полном заполнении ампулы серебром средний эффективный поток нейтронов вследствие самоэкранировки составит $\sim 59\%$ невозмущенного потока. На рисунке приведены функции $F(t)$ и $f(t)$, рассчитанные для следующих значений входящих в формулы (1) и (2) констант: $J_0 = 2 \cdot 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$; $J = J_{\text{эф}} = 0,59 J_0$; $\sigma_{107} = 35 \text{ б}$ [5]; $\sigma_{108} = 1,24 \text{ б}$ (среднее по работам [6, 7]); $\sigma_{109} = 700 \text{ б}$ [6]; $\lambda_{109} = 1,76 \cdot 10^{-8} \text{ 1/с}$ [1]; A принято равным 109. Коэффициенты $1,28 \cdot 10^{-4}$ и $3,32$ в формулах (1) и (3) получены при указанных выше значениях величин, входящих в эти формулы.

Анализ формулы (3) показывает, что наибольшая удельная активность, равная $4,23 \text{ Ки/г}$, достигается при облучении в течение ~ 400 сут, однако из рисунка видно, что уже через 100 сут удельная активность составляет 92% максимального значения.

Экспериментальные результаты. Для проверки эффективности данного метода получения ^{109}Cd образец металлического серебра массой $26,4 \text{ мг}$, обогащенный до $99,46\%$ ^{107}Ag и содержащий $0,54\%$ ^{109}Ag , был облучен в реакторе СМ-2 при плотности потока тепловых нейтронов $2 \cdot 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$. Эффективное время облучения составило $25,7$ сут, что соответствует продолжительности одной кампании реактора. Через 6 мес после окончания облучения было проведено радиохимическое выде-

ление кадмия, образовавшегося в облученном образце. Измерение активности ^{109}Cd , выделенного из облученного образца, и ^{110}Ag в облученном об-

разце дали следующие результаты (в скобках указаны цифры, относящиеся к моменту окончания облучения): активность ^{109}Cd равна $6,6 \pm 0,6 \text{ мКи}$ ($8,6 \text{ мКи}$); активность ^{110}Ag — $6,5 \pm 0,6 \text{ мКи}$ ($10,6 \text{ мКи}$); удельная активность ^{109}Cd — $3,0 \pm 0,6 \text{ Ки/г}$ ($3,9 \text{ Ки/г}$).

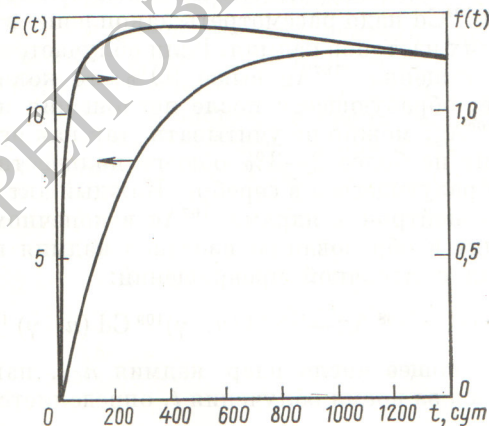
Эти значения в пределах погрешностей согласуются с расчетными, если иметь в виду, что вследствие малого количества облучаемого вещества нейтронный поток практически не был возмущен.

В облученном образце серебра нет никаких радиоизотопов кадмия, кроме ^{109}Cd , а поскольку кадмий легко отделяется от серебра химически, источник ^{109}Cd , полученный таким путем, имеет очень низкий уровень фонового излучения. Проведенные измерения фоновой активности образца ^{109}Cd , выделенного из облученного серебра, показали, что возможная примесь радиоактивности ^{110}Ag не превосходит 10^{-6} активности ^{109}Cd .

Заключение. Полученные данные позволяют с достаточной уверенностью определить перспективность этого метода производства ^{109}Cd для изготовления источников для рентгенорадиометрического анализа. В штатной ампуле реактора СМ-2 можно одновременно облучить $7,1 \text{ г}$ металлического серебра. В таблице приведены данные о числе источников, которые можно изготовить из этого серебра в зависимости от продолжительности облучения и диаметра источника. От размеров источника зависит количество ^{109}Cd , идущего на его изготовление, так как из-за невысокой удельной активности при уменьшении диаметра источника приходится увеличивать его толщину, а следовательно, и степень поглощения рентгеновского излучения энергией 22 кэВ в самом источнике.

При изготовлении источника неизбежны потери времени на доставку облученного материала изготовителю источников, на сам технологический процесс и на доставку источников потребителю. Средний интервал времени между окончанием облучения серебра и поступлением готового источника потребителю принят равным 6 мес. Данные, приведенные в таблице, относятся именно к такой продолжительности подготовительного цикла.

Оценки показывают, что затраты на изготовление одного источника (складывающиеся из стоимости обогащенного серебра и стоимости облучения) при времени облучения в течение свыше трех кам-



Зависимость $F(t)$ и $f(t)$ от продолжительности облучения

Зависимость выхода ^{109}Cd от продолжительности облучения

Продолжительность облучения (кампания реактора)	Общий выход радиоактивности ^{109}Cd , В * (мКи)	Количество источников с поверхностной активностью, соответствующей активности тонкого источника 10 мКи	
		диаметр 6 мм	диаметр 10 мм
1	861	63	77
2	2220	179	206
3	3350	292	330
4	4686	393	433
5	5841	497	548
6	6770	573	637
7	7775	661	732

* $B = B_0 \frac{M}{m} \frac{F(t)}{F_0(t)}$, где $B_0 = 6,6$ мКи, $m = 26,4$ мг — активность и масса экспериментального образца серебра, $M = 7,1$ г, $F(t)$ из рис. 1, $F_0(t) = 1,4$ — значение $F(t)$ для невозмущенного потока при $t = 25,7$ сут.

паний и более снижаются мало и достигают минимума при продолжительности облучения, равной пяти кампаниям. Если учитывать только указанные выше затраты, то стоимость одного источника ^{109}Cd (эквивалентного тонкому источнику с активностью 10 мКи), который получен данным методом, оказывается в несколько десятков раз ниже существующей цены на источник такой же активности, изготовленный циклотронным способом. Кроме того, реакторный способ дает возможность получать ^{109}Cd в количествах, которые позволяют полностью удовлетворить острую потребность в этих источниках.

Следует отметить, что если по радиоизотопной чистоте источники ^{109}Cd , получаемые рассмотренным способом, не уступают циклотронным источникам ^{109}Cd , то они существенно уступают им по удельной активности, достигающей у циклотронных источников более 100 Ки/г, благодаря чему можно изготавливать источники активностью 10 мКи при диаметре 1 мм.

Из обогащенного серебра, облученного в реакторе в течение трех кампаний, можно изготовить источник, эквивалентный по выходу излучения 22 кэВ тонкому источнику активностью 10 мКи диаметром 3,4 мм, а при диаметре 10 мм эффективную активность источника можно довести до 87 мКи, что позволит использовать для возбужде-

ния рентгеновских K -линий тяжелых элементов γ -линию 88 кэВ. При использовании γ -излучения энергией 88 кэВ размеры источников можно существенно уменьшить за счет увеличения их толщины, поскольку самопоглощение этого γ -излучения в веществе источника мало. Реакторный ^{109}Cd позволит изготавливать широкую номенклатуру различных источников для рентгенорадиометрического анализа, в том числе и кольцевой формы. В этом случае более низкая удельная активность, чем у циклотронного ^{109}Cd , не является недостатком, поскольку такие источники имеют достаточно большую площадь. Оценки показывают, что исследованный метод сохраняет ряд преимуществ (как в отношении общего выхода ^{109}Cd , так и по себестоимости изготавливаемых из него источников) при использовании несколько меньших нейтронных потоков порядка нескольких единиц $\times 10^{14}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$.

Таким образом, выполненные исследования доказывают практическую целесообразность и экономическую выгоду изготовления реакторных источников ^{109}Cd для рентгенорадиометрического анализа. Следует отметить, что получение ^{109}Cd путем облучения серебра в реакторе изучалось в работе [6]. Но из-за того, что в этой работе использовалось серебро природного изотопного состава, которое облучалось в потоке тепловых нейтронов с сравнительно низкой плотностью $\sim 2,5 \cdot 10^{14}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$, полученные результаты не позволили сделать вывод о перспективности рассматриваемого метода получения ^{109}Cd .

Авторы выражают глубокую благодарность Ю. Г. Севастьянову за радиохимическое выделение ^{109}Cd .

Список литературы

1. Leutz H., Schnechenberger K., Wenniuger H. «Nucl. Phys.», 1965, v. 63, p. 263.
2. Boley F. «Phys. Rev.» 1958, v. 94, p. 1078.
3. Geiger K. Ibid., 1957, v. 105, p. 1539.
4. Гусев Н. Г., Машкович В. П., Вербицкий Б. В. Радиоактивные изотопы как гамма-излучатели. М, Атомиздат, 1964.
5. Ядерные данные. Ч. II. М., Атомиздат, 1970, с. 6.
6. Lewis R., Beitter F. «Isotop. Radiat. Techn.», 1968, v. 6, N 1, p. 43.
7. Беда А. Г., Кондратьев П. Н., Третьяков Е. Ф. «Атомная энергия», 1964, т. 16, вып. 2, с. 145; Mangal S., Gile P. «Nucl. Phys.», 1962, v. 36, p. 542.

Поступила в Редакцию 07.08.78