

НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ СООБЩЕНИЯ

УДК 621.039.546.65

ПОЛУЧЕНИЕ ^{153}Sm , ^{166}Ho , ^{177}Lu В ВВР-СМ

Нишанов Ш.Ж., Хужаев С., Мирзаева Н.А., Турдиева Г.У. (ИЯФ АН РУз, Ташкент, Узбекистан),
Абдукаюмов А.М., Рихсиев А.З., Абдусалямов Н.Н. (ГП «Радиопрепарат» ИЯФ АН РУз,
Ташкент, Узбекистан)

^{153}Sm , ^{166}Ho и ^{177}Lu и их соединения находят все более широкое применение в различных областях науки и техники, особенно в медицине. Меченые соединения этих радионуклидов можно использовать в диагностических исследованиях и для лечения онкологических заболеваний [1—3].

Изотопы редкоземельных элементов получают, в основном, путем облучения в реакторе мишеней из природных или обогащенных соединений. При облучении наряду с целевым изотопом нарабатываются другие, которые являются примесями.

В настоящей статье приведены результаты экспериментов по получению ^{153}Sm , ^{166}Ho и ^{177}Lu в ВВР-СМ ИЯФ АН РУз и их очистки с помощью жидких экстрагентов ТБФ (три-н-бутилфосфат), Д2ЭГФК (ди-2-этилгексил-ортофосфорная кислота), ТОА (три-н-октиламин) и МДОА (метил-диоксиламин).

Облучению подвергали химические соединения Sm, Ho, Yb и Lu, в основном, оксиды, в некоторых случаях их серно-кислые соли. Для этого взвешенную навеску соединения в герметично запаянной кварцевой ампуле помещали в блок-контейнер из алюминия и облучали в одном из вертикальных каналов реактора в потоке нейтронов. Облученные образцы после выгрузки из реактора выдерживали для охлаждения, после вскрытия ампулы переносили в термостойкую химическую посуду для радиохимической обработки.

В исследованиях межфазового распределения радионуклидов использовали методы радиоактивных индикаторов и экстракции с помощью жидких экстрагентов.

Радиометрические измерения проводили на четырехканальном гамма-спектрометре NP-424L (Венгрия) со сцинтилляционным датчиком ND-420L. γ -Спектр анализировали на измерительной установке аналитического центра ИЯФ АН РУз, идентификацию радионуклидов проводили по их аналитической γ -линии.

Коэффициенты распределения радионуклидов в исследуемых системах в статистических условиях рассчитывали по формуле

$$D = [\text{Me}]_o / [\text{Me}]_v,$$

в динамическом режиме —

$$D = (V_{\max} - V_0) / V_{\text{эф}},$$

где $[\text{Me}]_o$, $[\text{Me}]_v$ — концентрация металла в органической и водной фазе соответственно; $V_{\max}$ — объем раствора, соответствующий максимуму хроматографического пика; V_0 , $V_{\text{эф}}$ — свободный и эффективный объем хроматографической колонки соответственно.

Фактор разделения элементов определяли по формуле

$$\alpha = D_1 / D_2,$$

где D_1 , D_2 — коэффициент распределения разделяемых элементов.

Расчеты активации нуклидов в ядерном реакторе. ^{153}Sm посредством β^- -распада превращается в ^{153}Eu . Максимальная энергия β^- -излучения 0,803 МэВ, средняя энергия γ -излучения 0,1 МэВ, период полураспада 46,2 ч. Расчеты показали, что при облучении самария природного изотопного состава в потоке тепловых нейтронов плотностью $5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ и жесткости спектра 0,2 можно нарабатывать до 3700 ГБк/г за 10 ч облучения.

Природный гольмий состоит из одного стабильного изотопа ^{165}Ho (100%). Моноизотопность гольмия облегчает получение его радиоактивного изотопа ^{166}Ho по реакции $^{165}\text{Ho}(n, \gamma)^{166}\text{Ho}$, сечение реакции $61,2 \pm 1,1$ б, энергия γ -излучения 0,081 МэВ (6,71%) и 1,379 МэВ (0,93%), период полураспада 26,76 ч. Расчеты показали, что при облучении образца гольмия массой 1 г в течение 10 ч в потоке тепловых нейтронов плотностью $5 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ нарабатывается примерно 3000 МБк. Перед химической переработкой облученную мишень выдерживают 20—30 ч.

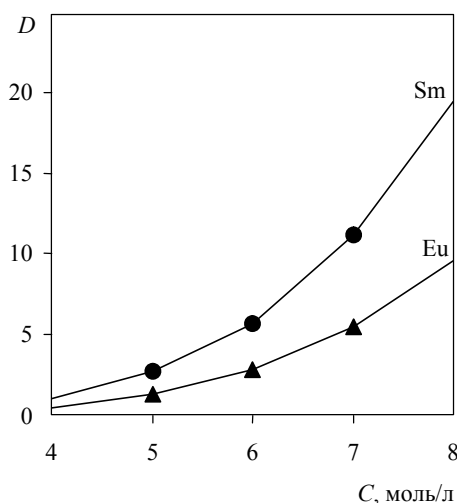
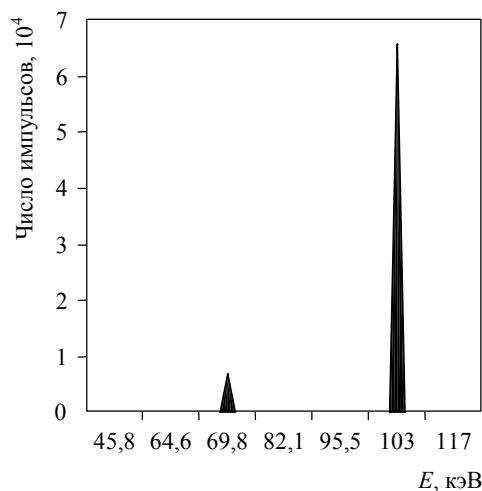
Таблица 1. Разделение самария, европия в исследованных системах

Система	Sm/Eu	Выход ^{153}Sm , %
Д2ЭГФК—HCl	1,98	96,7
ТОА—LiNO ₃	2,06	97,2
МДОА—LiNO ₃	2,28	99,5

^{177}Lu можно нарабатывать в реакторе по реакции $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$ и облучением мишеней из иттербия по цепочке $^{176}\text{Yb}(n, \gamma)^{177}\text{Yb} \xrightarrow{\beta^{-1,9\text{ ч}}} ^{177}\text{Lu}$. Второй способ позволяет получать изотоп высокой удельной активности. Наилучший результат получается при использовании мишени, обогащенной ^{176}Yb . Сечение первой реакции 1770 б, второй — 5,5 б, энергия γ -излучения 71,6 (0,15%), 112,9 (6,4%), 208,4 (11,1%), 249,7 (0,21%) и 321,3 кэВ (0,22%), период полураспада 6,73 сут. При облучении мишени из лютеция наряду с основным изотопом образуются ^{177m}Lu , ^{176m}Lu , которые имеют период полураспада 160,4 сут и 3,66 ч соответственно. По этой причине более предпочтительным оказывается второй способ получения радионуклида.

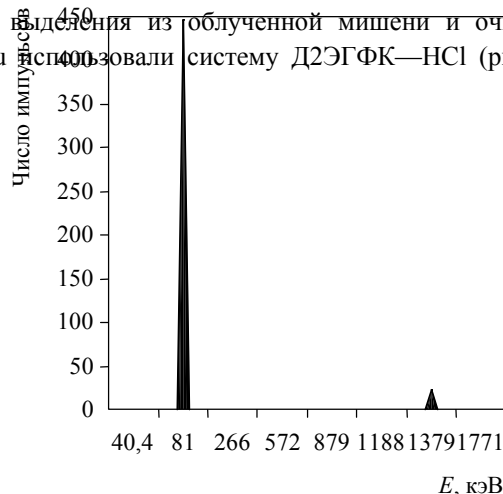
Результаты и их обсуждение. Экспериментальные результаты свидетельствуют, что в составе радиоактивного ^{153}Sm в качестве примеси присутствуют, главным образом, европий (табл. 1, рис. 1). Из полученных результатов видно, что лучшее разделение самария и европия наблюдается при концентрации водного раствора 7 моль/л и выше. Поэтому для радиохимической переработки облученных образцов самария при производстве ^{153}Sm использовали МДОА и ТОА (рис. 2).

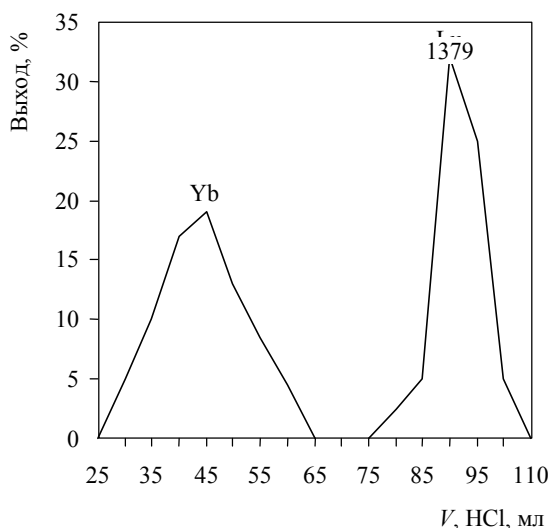
Распределение гольмия изучали при его экстракции в ТБФ из водных растворов HNO_3 и NH_4NO_3 . Концентрацию водных растворов изменяли в интервале 0,1—10 моль/л. Экстракция неразбав-

Рис. 1. Зависимость коэффициентов распределения Sm и Eu от концентрации LiNO₃ при очистке с помощью ТОАРис. 2. γ -Спектр очищенного ^{153}Sm Таблица 2. Коэффициенты распределения ^{166}Ho в системе с ТБФ в зависимости от концентрации водного раствора

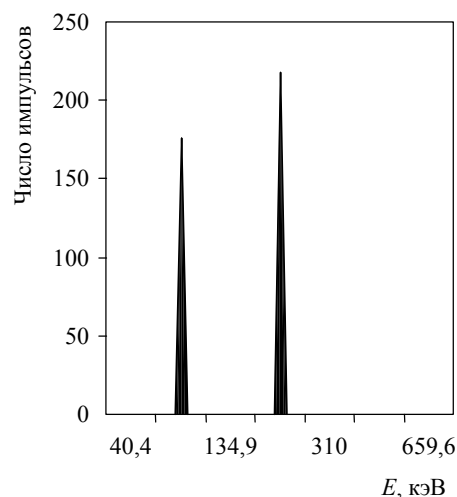
Концентрация HNO_3 , моль/л	Коэффициент распределения	Концентрация NH_4NO_3 , моль/л	Коэффициент распределения
0,1	0,05	0,1	0,11
0,5	0,07	0,5	0,50
1	0,27	1	0,57
2	0,34	2	0,68
4	0,60	4	1,12
8	1,94	8	2,73
10	3,45	10	5,65

ленным раствором ТБФ предпочтительна из водных растворов нитрата аммония. Причем из более концентрированных растворов экстракция идет лучше (табл. 2). Таким образом, при производстве ^{166}Ho можно использовать ТБФ и водные растворы нитратной соли азотной кислоты (рис. 3). Для получения ^{177}Lu использовали мишени из обогащенного ^{176}Yb . Для выделения из облученной мишени и очистки ^{177}Lu использовали систему Д2ЭГФК—HCl (рис. 4, 5).

Рис. 3. γ -Спектр ^{166}Ho



Р и с. 4. Хроматограмма разделения Yb и Lu в системе Д2ЭГФК (ФТ-4)—HCl ([HCl] = 3,5—4 моль/л)



Р и с. 5. γ-Спектр ^{177}Lu после очистки

Таким образом, для наработки ^{153}Sm в ядерном реакторе ВВР-СМ ИЯФ АН РУз предложены системы с третичными аминами ТОА и МДОА, система с ТБФ использована для производства ^{166}Ho . Для получения ^{177}Lu оптимальным вариантом является облучение мишеней иттербия, обогащенных ^{176}Yb . Более чистый ^{177}Lu можно получать, используя систему с Д2ЭГФК на твердом носителе фторопласте-4.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ.

1. Ehrhardt G., Ketring A., Cutler C. Radioisotope radiotherapy research and achievements at the University of Missouri Research Reactor. — *Czech. J. Phys.*, 2003, v. 54, № 2, p. 707—712.
2. Ketring A., Embree M., Bailey K., Tyler T. Production and supply of high specific activity radioisotopes for radioteraphy applications. — *World J. Nucl. Medicine*, 2002, v. 1, № 1/2, p. 185—189.
3. Arquelles M., Bouziotis P., Dahalan R. Optimization of Production and Quality Control of Therapeutic Radionuclides and Radiopharmaceuticals. IAEA-TECDOC-1114, Vienna: IAEA, 1999.

Поступило в Редакцию 19.02.10

УДК 536.248.2

УПРОЩЕННАЯ МОДЕЛЬ КРИЗИСА ТЕПЛООТДАЧИ В ПУЧКАХ СТЕРЖНЕЙ

Ивашикевич А.А. (г. Обнинск)

Одним из факторов, ограничивающих мощность ядерных реакторов типа ВВЭР, является критический тепловой поток. Для расчета критического теплового потока при вынужденном течении воды в пучках с треугольным расположением равномерно обогреваемых стержней предложены эмпирические формулы [1—5]. Для более точного обобщения опытных данных желательно заранее знать зависимость критического теплового потока от параметров. Для кризиса теплоотдачи при вынужденном течении воды в каналах предложены различные модели [6, 7], однако общепринятая модель не найдена. Это объясняется сложностью и недостаточной изученностью процесса [8—11].

Цель настоящей работы — предложить простую модель, описывающую зависимость критического теплового потока от параметров.

При разработке моделей делаются предположения и допущения, справедливость которых пока нельзя доказать или опровергнуть из-за отсутствия соответствующих данных. Справедливость предлагаемой модели будет оцениваться по согласованию с опытными данными при условии, что число эмпирических коэффициентов будет меньше числа параметров, влияющих на кризис.

Возникновение кризиса рассматривается в длинном обогреваемом пучке стержней, на вход которого подается недогретая вода, а выходит смесь с небольшим паросодержанием. На начальном участке, когда