

Выводы. Для повышения уровня надежности и безопасности ядерных установок, повышения компактности изделий, снижения облучения персонала актуально использование нетрадиционных технических средств, в том числе устройств с памятью формы.

В настоящее время по поводу использования устройств с памятью формы в ядерных установках имеется определенный научно-технический потенциал: стратегия использования, опытно-промышленная технология изготовления различных полуфабрикатов, набор сплавов с различной температурой срабатывания, принципиальные и конструкторские решения, теоретические основы, экспериментальная база исследования, экспериментальные характеристики, проверка и опыт эксплуатации (частично в реакторных условиях), программа совершенствования в направлении повышения стойкости к облучению, быстрогодействия, коррозионной стойкости.

Из многообразных устройств с памятью формы в первую очередь, по-видимому, будут использоваться неподвижные термомеханические соединения, уплотнения, заглушки, фиксаторы и т.п., самодействующие двухпозиционные противоаварийные устройства воздействия на основной процесс установки и расход среды, электрически управляемые исполнительные механизмы для запорной арматуры и малогабаритного инструмента.

Для ускорения процесса внедрения таких устройств в ядерную технику необходимо составление межфирменного каталога имеющихся устройств с памятью формы; разработка толкового словаря по применению сплавов с памятью формы; строгое разделение этапов исследования и разработки, составление технических условий, паспортизация сплавов и устройств с памятью формы, разработка инженерных методик конструирования и расчетов устройств, включая способы быстрого нагрева, охлаждения и расчет быстрогодействия.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Митенков Ф.М., Самойлов О.Б., Шукин И.М. Перспективы использования сплавов с памятью формы в атомной технике. — Тяж. машиностроение, 1991, № 7, с. 16—19.
2. Труды конференции по технологии памяти формы и сверхупругости. США, 7—10 марта 1994 г., 3—6 марта 1997 г.
3. Ионайтис Р.Р. Комплекс критериев для определения, обеспечения и повышения уровня безопасности энергоустановок. — Атомная энергия, 1995, т. 79, вып. 2, с. 83—88.
4. Полуфабрикаты из сплавов никелида титана, обладающих ЭПФ. — Технология легких сплавов, 1990, № 4, с. 5—6.
5. Ионайтис Р.Р., Котов В.В., Шукин И.М. Сплавы с памятью формы (СПФ) в ядерной энергетике России. Докл. на Межд. сем. «СПФ в электроэнергетике». США, Пало-Альто, 1994 г. IPRI-TR-105072, 1995, с. 10.1—10.5.
6. Ионайтис Р.Р., Котов В.В., Шукин И.М. Применение сплавов с памятью формы в ядерной энергетике. — Атомная энергия, 1995, т. 79, вып. 4, с. 304—306.
7. Труды российско-американского семинара «Актуальные проблемы прочности». С.-Петербург, ноябрь 1995 г., ч. 1 150 с., ч. 2 140 с., ч. 3 120 с.
8. Ионайтис Р.Р. Концепция использования функциональных материалов в нетрадиционных средствах безопасности ЯУ. Докл. на Межд. конференции по интеллект. материалам. Лион, июнь 1995 г., SPIE, т. 2779, с. 974—985.
9. Тезисы докладов XXXII семинара «Актуальные проблемы прочности». С.-Петербург, ноябрь 1996 г. 166 с.

Поступило в Редакцию 6.12.96

УДК 621.039.554

ПОЛУЧЕНИЕ ^{89}Sr В БЫСТРЫХ РЕАКТОРАХ

*Звонарев А.В., Матвеев И.П., Павлович В.Б., Подсобляев Д.А.,
Поплавский В.М., Сметанин Э.Я., Хомяков Ю.С., Цибуля А.М., Черный В.А.
(ГНЦ РФ — ФЭИ им. А.И. Лейпунского),
Гаджиев Г.И., Корольков А.С. (ГНЦ РФ — НИИАР),
Кравченко И.Н. (АО «Технолига»)*

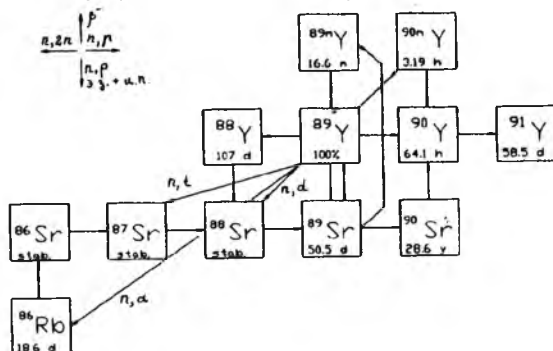
В настоящее время ^{89}Sr , применяемый в медицине, получают путем облучения мишеней из высокообогащенного стронция ($^{88}\text{Sr} > 99,9\%$) в потоке тепловых нейтронов. Необходимость применения обогащенных мишеней связана с образованием ^{85}Sr , который в данном случае рассматривается как нежелательная примесь, и стремлением увеличить наработку ^{89}Sr .

Потоки, спектр нейтронов в тепловых реакторах и сечение реакции радиационного захвата (n, γ) ^{88}Sr определяют максимально возможную удельную активность ^{89}Sr , которая составляет около 10 Ки/г. В быстрых реакторах имеется возможность использования для наработки радионуклидов высокой удельной активности пороговых реакций с вылетом заряженных частиц, таких, как (n, α), (n, p). В этих реакциях в отличие от реакции (n, γ) получается новый по сравнению с мишенью химический элемент, который можно выделить из мишени-носителя, что позволяет существенно повысить удельную активность.

В БР-10 в постоянное время нарабатываются ^{32}P , ^{33}P и ^{35}S по реакции (n, p) на ^{32}S , ^{33}S и ^{35}Cl соответственно. В настоящей работе рассматривается возможность получения ^{89}Sr по реакции (n, p) на ^{89}Y [1].

Особенности получения ^{89}Sr . Первое преимущество этого способа заключается в том, что ^{89}Y является единственным природным изотопом иттрия. Следовательно, отпадает проблема изотопного обогащения мишени, что облегчает получение стартового материала. Как видно из рис. 1, в этой схеме исключается образование ^{85}Sr , а единственный примесный радиоактивный изотоп ^{90}Sr (среди изотопов стронция) образуется только в результате двух последовательных реакций. Наконец, еще одним преимуществом данного способа получения и, может быть, главной особенностью конечного продукта является высокая удельная активность ^{89}Sr . Это может быть достигнуто путем химического выделения последнего из материала мишени. Химические свойства стронция и иттрия заметно различаются, что также является благоприятным фактором.

Специфические проблемы возникают из-за малого сечения основной реакции (десятые доли миллибарн на спектре деления). Этот недостаток можно частично компенсировать увеличением времени облучения и более кардинально — повышением массы мишени. В табл. 1 приведены расчетные оценки показателей наработки ^{89}Sr в БР-10 (ФЭИ) и БОР-60 (НИИАР). Время облучения выбрано кратным типичной микрокампании каждого реактора.



Р и с. 1. Схема взаимных превращений нуклидов при облучении иттрия

Т а б л и ц а 1. Расчетные параметры наработки ^{89}Sr

Параметр	БР-10		БОР-60	
	20 сут	60 сут	60 сут	120 сут
Удельная наработка ^{89}Sr , мКи/г Y	2,1	4,8	12	17
Общая наработка в одной ячейке, Ки*	0,69	1,6	12,2	17,4
Изотопный состав, % по массе:				
^{87}Sr	$8,3 \cdot 10^{-3}$	$9,4 \cdot 10^{-3}$	$9,6 \cdot 10^{-3}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$
^{88}Sr	31,4	39,4	40,5	51,3
^{89}Sr	68,6	60,6	59,5	48,7
^{90}Sr	$4,7 \cdot 10^{-4}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$	$5,8 \cdot 10^{-3}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$
Активность ^{90}Sr , %	$3,2 \cdot 10^{-6}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$4,6 \cdot 10^{-5}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$
Удельная активность ^{89}Sr , кКи/г Sr	19,9	17,6	17,3	14,1

*Масса иттрия в мишени принята для БОР-60 1020 г, БР-10 — 330 г.

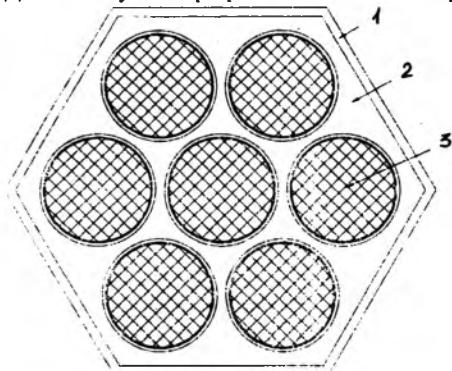
Для определенности будем различать два понятия: удельная наработка — активность ^{89}Sr на 1 г мишени, удельная активность — активность ^{89}Sr на 1 г стронция, содержащегося в мишени после облучения.

При больших потребностях в ^{89}Sr , измеряемых десятками Ки в отдельных поставках (до 100 Ки и более в год), необходимо использовать более мощный реактор БОР-60, при умеренных (до нескольких Ки) — БР-10. Большой объем потенциального производства ^{89}Sr в БОР-60 обусловлен интенсивным нейтронным потоком, большим объемом ячейки, а также числом ячеек, которые можно использовать для этой цели.

В

Удельная активность ^{89}Sr высока, чуть меньше теоретической «чистого» ^{89}Sr . Это отличие связано с его разбавлением неактивным ^{88}Sr , который, в основном, образуется по реакциям ($n, 2n$) (через промежуточное ядро ^{88}Y) и (n, p') на ^{89}Y .

Опытная отработка технологии получения ^{89}Sr . В качестве материала мишени выбран оксид иттрия. Для его облучения разработано несколько вариантов облучательных устройств. Принципиальными особенностями конкретных облучательных устройств являлись средняя плотность мишени и способ ее ампулирования. Добивались высокой плотности мишени. Но при этом приходилось считаться с тем, что усложнение технологии изготовления может и, как было установлено, действительно приводит к дополнительному загрязнению мишени. Для предотвращения загрязнения мишени как в процессе облучения, так и при разделке облучательных устройств в некоторых из них (для БР-10) оксид иттрия загружали в кварцевую ампулу, которую затем помещали в чехол из нержавеющей стали.



Р и с. 2. Схема экспериментальной сборки для наработки ^{89}Sr в БОР-60: 1 — чехол; 2 — натриевый теплоноситель; 3 — оксид иттрия

На рис. 2 в качестве примера представлена сборка для облучения оксида иттрия в БОР-60, которая аналогична штатной ТВС и содержит семь элементов со стартовым материалом. В ней таблетки из оксида иттрия загружены непосредственно в трубки из нержавеющей стали. Сборки с оксидом иттрия облучали и в БР-10 (табл. 2).

Т а б л и ц а 2. Результаты экспериментального облучения

Параметр	БР-10		БОР-60	
	1-е облучение	2-е облучение	1-е облучение	2-е облучение
Время облучения, эф. сут	16,1	17,7	58,2	81
Плотность потока, $10^{21} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$	1,18	1,30	12,2	17,5
Удельная наработка ^{89}Sr , мКи/г Y:				
эксперимент	1,89	1,95	14,1	15,8
расчет	1,82	2,00	11,0	13,3
Радионуклидная чистота, %:				
β -излучатели:				
^{90}Sr	$7,5 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-5}$	$9,6 \cdot 10^{-4}$	$2,4 \cdot 10^{-4}$
все остальные	$1,5 \cdot 10^{-4}$	—	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{-4}$
γ -излучатели:				
^{54}Mn	—	$5,8 \cdot 10^{-3}$	—	—
^{58}Co	—	$< 9 \cdot 10^{-4}$	$< 0,7 \cdot 10^{-4}$	—
^{85}Sr	$1,5 \cdot 10^{-3}$	—	$< 10^{-4}$	—
^{88}Y	—	—	$0,9 \cdot 10^{-4}$	—
^{86}Rb	—	—	$3,5 \cdot 10^{-3}$	—
^{133}Ba	—	—	—	$4 \cdot 10^{-4}$
^{137}Cs	—	—	$1,5 \cdot 10^{-3}$	—

Процесс выделения ^{89}Sr из иттрия состоит из нескольких основных стадий. Первая — подготовка мишени к растворению. На этой стадии дезактивируются наружные поверхности ампул. Оксид иттрия растворяется при кипении и постоянной кислотности в 3М азотной кислоте. Затем в зависимости от содержания иттрия проводится либо кристаллизация нитрата иттрия, что позволяет отделить ~ 70% основной массы иттрия (потери ^{89}Sr при этом составляют не более 5%), либо экстракция иттрия 100%-ным трибутилфосфатом (ТБФ). Процесс подготовки исходного раствора для проведения этих операций состоит в глубоком упаривании раствора (до пастообразного состояния) и добавлении к упаренному раствору 16,5М азотной кислоты до конечной кислотности не менее 14М. Полученный раствор выдерживают в течение 12—16 ч для кристаллизации нитрата иттрия либо сразу же направляют на экстракционное выделение иттрия 100%-ным ТБФ, предварительно насыщенным азотной кислотой до 7—8М.

На следующем этапе (отделение миллиграммовых количеств иттрия) сорбируют ^{89}Sr на катионите КУ-2 в NH_4 -форме из растворов с помощью комплексонов (ЭДТА или ДТПА) при pH 4,1—4,2 и оставшийся иттрий из слабокислых растворов — 0,1—0,3М по азотной кислоте на порошке фторопласта с нанесенным на него экстрагентом — ди-2-этилгексилфосфорной кислоты (Д2ЭГФК). После этого происходит окончательная очистка ^{89}Sr от иттрия и других микро- и макропримесей.

В дальнейшем в связи с необходимостью поставки ^{89}Sr в виде слабокислых соляно-кислых растворов проводится операция по его глубокой очистке на катионите — КУ-2 в H^+ -формуле. На этой стадии очистки и подготовки растворов ^{89}Sr к отправке используются специально очищенный катионит КУ-2, изотермическим способом полученная соляная кислота и кварцевая вода.

Результаты. В процессе химической переработки осуществлялся контроль по всей технологической цепочке методами γ - и β -спектрометрии. Состав и активность γ -излучающих нуклидов измеряли с помощью полупроводникового $\text{Ge}(\text{Li})$ -детектора объемом 125 см³. β -Спектрометрические измерения применяли, в основном, для конечного продукта, когда на основе γ -спектрометрических данных появлялась уверенность, что других β -активных источников, сопровождаемых γ -излучением, нет или их активность мала по сравнению с активностью ^{89}Sr . β -Спектрометр собран с использованием в качестве детектирующего устройства тонкого кристалла антрацена. Количество ^{89}Sr определяли по его β -активности в сравнении с эталонным источником, приготовленным из образцового раствора ^{90}Sr — ^{90}Y , аттестованного с погрешностью 2%. Основным результатом исследований является накопление ^{89}Sr . Как видно из табл. 2, полученная наработка соответствует расчетной.

Радионуклидную чистоту нескольких проб анализировали в том числе специалисты американской фирмы «Амершам». Основные проблемы связаны с примесью ^{90}Sr . Для медицинского препарата «Метастрон» [2] наложено сильное ограничение на его содержание в ^{89}Sr — не более $2,3 \cdot 10^{-4}\%$. В то же время в ^{89}Sr , полученном после первого облучения как в БР-10, так и БОР-60, обнаружен ^{90}Sr в количестве $\sim 10^{-3}\%$.

Анализ показывает, что основной канал получения ^{90}Sr из ^{89}Y — $^{89}\text{Y} (n, p) ^{89}\text{Sr} (n, \gamma) ^{90}\text{Sr}$ дает более чем в 10 раз низкое содержание ^{90}Sr . Если принять во внимание, что ^{90}Sr с достаточно большим выходом накапливается в процессе деления урана, то можно предположить образование полученного избытка в продукте из микропримесей урана в иттрии. Как показали расчеты, при средней концентрации природного урана в иттрии $10^{-4}\%$ по массе деление урана загрязняет продукт ^{90}Sr , что сравнимо с основным «неустраняемым» каналом из иттрия. Поэтому в технологию подготовки мишени были внесены изменения, позволяющие уменьшить содержание урана в иттрии до $10^{-5}\%$ по массе, а также введен контроль за содержанием урана в таблетках оксида иттрия, идущих на облучение. Контроль осуществлялся методом твердотельных трековых детекторов, имеющих высокую чувствительность. Эти меры привели к тому, что содержание ^{90}Sr при втором облучении снизилось до приемлемого уровня.

Следует отметить еще два аспекта. Во-первых, относительное содержание ^{90}Sr линейно растет со временем облучения. Во-вторых, оно экспоненциально увеличивается по мере выдержки облученного материала. Поэтому чрезмерное увеличение продолжительности облучения недопустимо, а время выдержки должно быть ограничено. От окончания облучения в БОР-60 до отправки продукта потребителю не должно проходить более 64 сут (при облучении в течение 120 сут) или 120 сут (при 60-суточном облучении). Для БР-10 эти ограничения менее жесткие.

Заключение. Таким образом, предложен новый способ получения медицинского ^{89}Sr из природного иттрия по реакции (n, p) в быстрых реакторах. Исследования подтвердили расчетные параметры наработки: от 2 до 15 мКи ^{89}Sr на 1 г исходного иттрия, показали возможность извлечения ^{89}Sr и получения окончательного продукта необходимой радионуклидной чистоты. В настоящий момент начато промышленное производство ^{89}Sr в БР-10 и БОР-60.

Авторы выражают признательность сотрудникам ГНЦ РФ — ФЭИ С.Б. Боброву, В.И. Иванову, Е.А. Крючкову, В.Г. Лифорову, Л.И. Мамаеву, И.Г. Шейнкер, которые принимали активное участие на различных этапах настоящей работы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гаджиев Г.И., Звонарев А.В., Корольков А.С. и др. Способ получения препаратов на основе стронция-89. Патент на изобретение по заявке 94041037/14 (041505) от 17.11.94.
2. Metastron. Product Cod SMS: 2 PA Amersham Med- Physic Inc. 26365, 1993. Clear Book, Drif, Arlington Heights, Illinois 60005, USA.