

^{198}Au , ^{199}Au 产额的理论计算与 照射条件的选择

徐 新

(原子能研究所)

对生产 ^{198}Au 应选用的照射条件进行了理论计算和分析。结果表明,与目前世界上大多数国家的做法相反,为了使二次中子俘获生成的 ^{199}Au 较少,生产 ^{198}Au 应尽量采用高通量、短时间照射的办法。

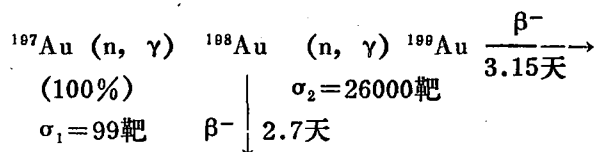
引 言

利用核反应 $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 生产 ^{198}Au 时,由于生成的 ^{198}Au 有很大的中子俘获截面(26000巴)^[1],故同时有相当量的 ^{199}Au 生成(其量可以直至 ^{198}Au 的数倍)。对于生产 ^{198}Au 时究竟应选择什么照射条件的问题,国际上还没有清楚一致的认识^[2]。有两个国家(英国、丹麦)采用 2×10^{14} 中子/秒·厘米²的极高通量照射,而其余的绝大多数国家地区(十八个中有十六个)则恰恰相反,采用极低的通量(有的低至 5×10^{12} 中子/秒·厘米²)照射制备,其中包括美、法及东欧国家。

前两年,我们就此问题进行了较仔细的计算、分析,并与生产实践中得到的数据进行了对照^[3]。对计算结果的分析表明,目前多数国家地区采用的照射条件是不合理的^[2]。这明显地是出于理论认识的错误。以下是我们的计算和分析。

一、计 算

核反应链和所采用的核数据如下^[注]:



根据通解公式:

$$N_m = C_1 e^{-\Lambda_1 t} + C_2 e^{-\Lambda_2 t} + \dots + C_m e^{-\Lambda_m t},$$

$$C_1 = \frac{\Lambda_1^* \Lambda_2^* \dots \Lambda_{m-1}^* N_1(0)}{(\Lambda_2 - \Lambda_1)(\Lambda_3 - \Lambda_1) \dots (\Lambda_m - \Lambda_1)},$$

1978年8月10日收到。

[注] ^{199}Au 还有约 30 靶(σ_3)的中子俘获截面。当 $\phi \leq 10^{15}$ 时, $\phi \sigma_3 \leq 0.01 \times \lambda_3$, 对计算结果影响不大。本文计算时设 $\Lambda_3 \approx \lambda_3$ 。

$$C_2 = \frac{\Lambda_1^* \Lambda_2^* \cdots \Lambda_{m-1}^* N_1(0)}{(\Lambda_1 - \Lambda_2)(\Lambda_3 - \Lambda_2) \cdots (\Lambda_m - \Lambda_2)},$$

依次类推。其中, N_i 为第 i 个链元的原子数 (t 的函数); Λ_i 为 N_i 总的消减几率常数; Λ_i^* 为 N_i 形成 N_{i+1} 的几率常数, λ_i 或 $\Phi\sigma_i$ 。

上面公式的适用条件是, $t = 0$ 时:

$$N_2(0) = N_3(0) = \cdots = N_m(0) = 0.$$

对于 ^{198}Au 、 ^{199}Au 的照射产额问题, $\Lambda_1 = \Lambda_1^* = \Phi\sigma_1$; $\Lambda_2 = \lambda_2 + \Phi\sigma_2$; $\Lambda_2^* = \Phi\sigma_2$; $\Lambda_3 \approx \lambda_3$ (其中 λ_i 为衰变常数; Φ 为中子通量, 量纲为厘米 $^{-2}$ ·秒 $^{-1}$, 下文及图中常省略)。可导出 ^{198}Au 、 ^{199}Au 的照射产额 (用 A_{198} 、 A_{199} 分别表示其放射性比度) 公式为:

$$A_{198} = \frac{\Lambda_2 \Phi \sigma_1 N_1(0) [e^{-\Lambda_1 t} - e^{-\Lambda_2 t}]}{3.7 \times 10^{10} (\Lambda_2 - \Lambda_1)},$$

$$A_{199} = \frac{\lambda_3 \Phi^2 \sigma_1 \sigma_2 N_1(0)}{3.7 \times 10^{10}} \left[\frac{e^{-\Lambda_1 t}}{(\Lambda_2 - \Lambda_1)(\Lambda_3 - \Lambda_1)} + \frac{e^{-\Lambda_2 t}}{(\Lambda_1 - \Lambda_2)(\Lambda_3 - \Lambda_2)} + \frac{e^{-\Lambda_3 t}}{(\Lambda_1 - \Lambda_3)(\Lambda_2 - \Lambda_3)} \right],$$

设 $p = \frac{A_{199}}{A_{198}}$, 简称为“ ^{199}Au 比”。

上述表达式中, $N_1(0) = \frac{6.023 \times 10^{23}}{197} = 3.05 \times 10^{21}$; $\sigma_1 = 9.9 \times 10^{-23}$ 厘米 2 , $\sigma_2 = 2.6 \times 10^{-20}$ 厘米 2 ; $\lambda_2 = 2.97 \times 10^{-8}$ 秒 $^{-1}$, $\lambda_3 = 2.55 \times 10^{-8}$ 秒 $^{-1}$; A_{198} 、 A_{199} 的单位都是居里/克金靶。

用 ALGOL 语言编程序后, 用 803 计算机进行计算并打印成表, 中子通量取 5×10^{12} , $(2, 4, 6, 8) \times 10^{13}$, $(1, 1.2, 2) \times 10^{14}$, 1×10^{15} 共 9 个值, 时间从 4 小时间隔起, 直至 14, 99 天共 30 个值。现将其中部分数据绘成图 1, 2, 3, 4 的曲线组。

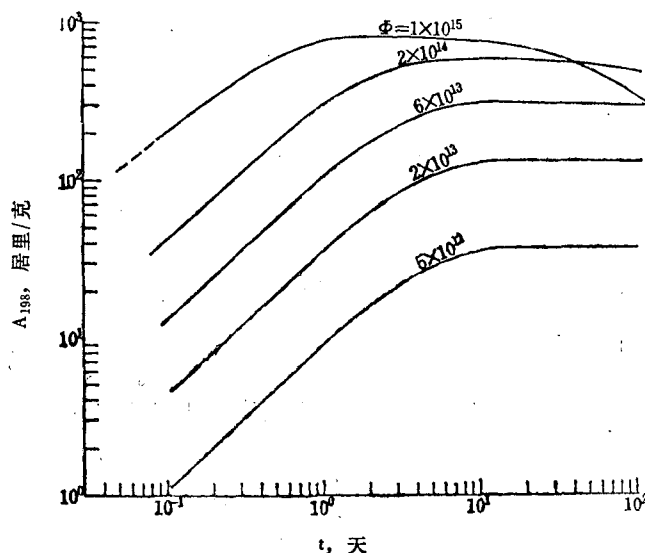


图 1 ^{198}Au 产额与照射时间的关系

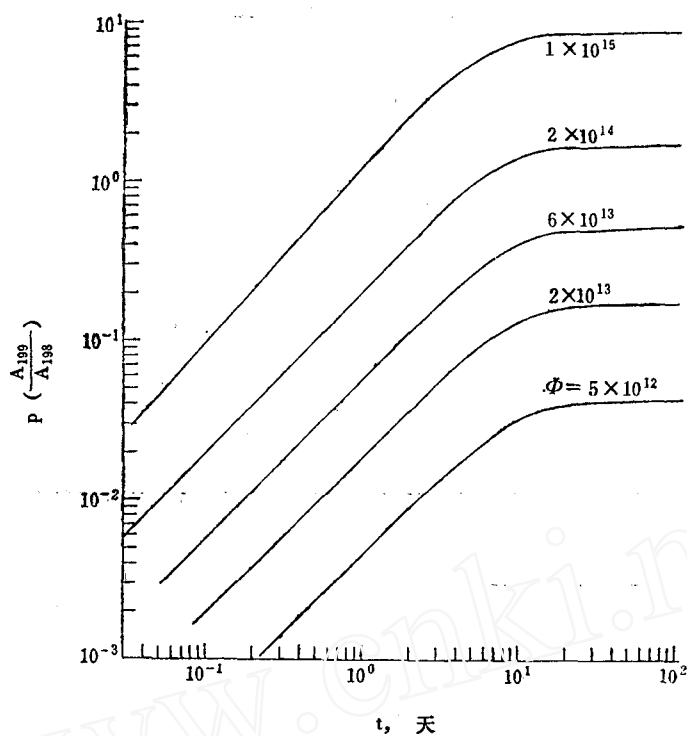


图2 P 与照射时间 t 的关系

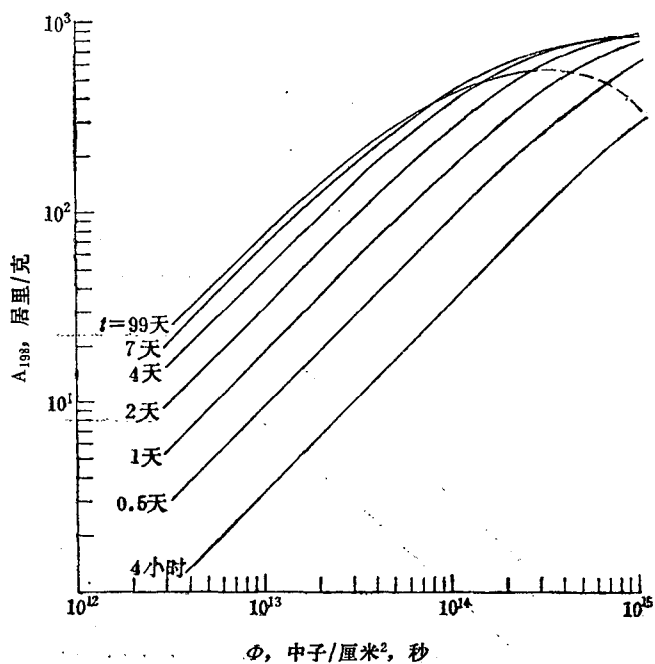


图3 ^{198}Au 产额与照射通量的关系

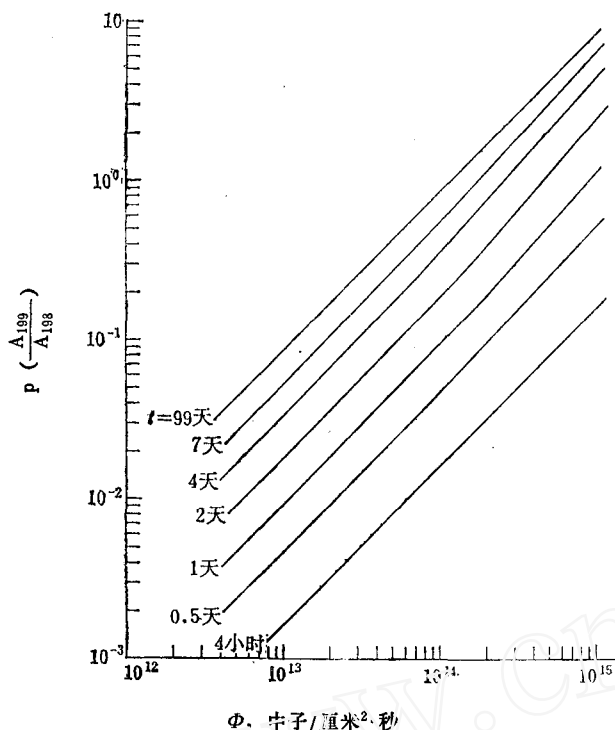


图4 P 与照射通量的关系

点, 连结 EF , 线段 EF 可近似认为是时间参数为20小时的 $A_{198}-\Phi$ 曲线的一段, EF 与 $\Phi = 1.2 \times 10^{14}$ 的直线交于 G 点, G 点的纵座标即为所求的 A_{198} 值。用图解法求得值为 170, 计算机计算结果为 169, 符合很好。图解法步骤表示于图 5。

P 的求法相同, 只要用图 2、图 4 平列即可。

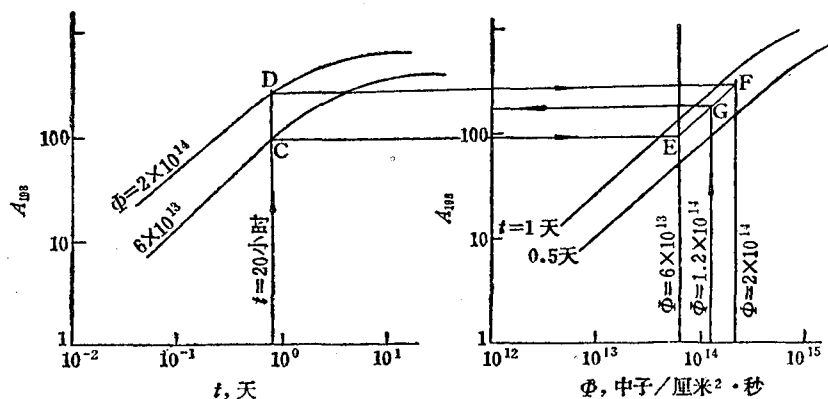


图5 图解法求 A_{198} 示意图

此法虽用两个图, 但比用一个图的插入法方便且较准确。

二、容易造成的误解

由计算公式, 容易推出:

(1) 当 t 较小, 满足 $\Lambda_2 t, \Lambda_3 t$ 均 $\ll 1$ 时,

$\therefore \Lambda_1 = \Phi \sigma_1$ 很小 (如当 $\Phi = 1 \times 10^{15}$, $\Phi \sigma_1 = 9.9 \times 10^{-8}$), $\Lambda_1 \ll \Lambda_2, \Lambda_3$; $\Lambda_2 - \Lambda_1 \simeq \Lambda_2$,
 $\Lambda_3 - \Lambda_1 \simeq \Lambda_3$; $e^{-\Lambda_1 t} \simeq 1$,

将 $e^{-\Lambda_2 t}, e^{-\Lambda_3 t}$ 展开至平方项 (如 $e^{-\Lambda_2 t} \simeq 1 - \Lambda_2 t + \frac{(\Lambda_2 t)^2}{2}$),

化简即得:

$$p \simeq \frac{\lambda_3 \sigma_2}{2\lambda_2} \Phi t,$$

p 与 Φt 成线性关系。

(2) $t \rightarrow \infty$, 即满足 $\lambda_3 t, \Lambda_2 t \gg 1$ 时,

$$p = \frac{\sigma_2}{\lambda_2} \Phi,$$

p 与 Φ 成线性关系。

由图 4 ($p-\Phi$ 曲线) 可见, 这些近似推导出的结论是正确的。不仅如此, 而且任何一定时间的照射, p 都与 Φ 近似成线性关系。

这就使多数人产生了这样的错觉, 即认为: 要使 ^{198}Au 比低, 就应采用尽量低的通量照射^[2]。

三、由 $\Lambda_{198}-t$, $p-t$ 曲线组讨论照射条件的选择

但是, 必须指出, p 随 Φ 增加而近似地线性增加的关系, 只是在照射时间固定时才成立。实际的问题是, Φ, t 都是可变的。而且, 选用的 Φ 高, 达到同一比度所用的时间就可以短。这样, 对于同一比度要求, 究竟采用什么样的 Φ 照射最有利, 就不能单根据上面的等时关系式, 而须用计算机计算求解。对这个问题, 可设计一逐次逼近法的程序, 对于不同的 Φ , 求出一定 Λ_{198} 所需的不同照射时间。然后算出相应的 p , 进行比较。我们现在用 $\Lambda_{198}-t$, $p-t$ 图的图解分析法来讨论这个问题。

将图 1、图 2 上下纵列, 使 Λ_{198} 轴、 p 轴在一直线上。选定一比度 A_1 , 作 $\Lambda_{198} = A_1$ 的直线 (平行于横轴) 与不同 Φ 参数的 $\Lambda_{198}-t$ 曲线交于一系列点, 过这些点作平行于纵轴的直线, 与对应 Φ 参数的 $p-t$ 曲线交点的纵座标即为对应的 p 值。对应于 $\Lambda_{198} = 30$ 居里/克, 用图解法所得的数据列于表 1。

表 1 选用不同 Φ 所得 p 值的比较

Φ	5×10^{12}	2×10^{13}	6×10^{13}	2×10^{14}
t^*	5.4天	0.8天	6小时	1.68小时
p	2.1×10^{-2}	1.5×10^{-2}	1.4×10^{-2}	1.35×10^{-2}

* 均达到 30 居里/克的比度。

由表 1 可见: 采用高通量、短时间得到相同比度的 ^{198}Au 中所含的 ^{199}Au 较低。目前大多数国家采用低通量 (有的低到 $2 \sim 5 \times 10^{12}$)、长时间照射^[2], 这时照射费用可能增加, 而所得

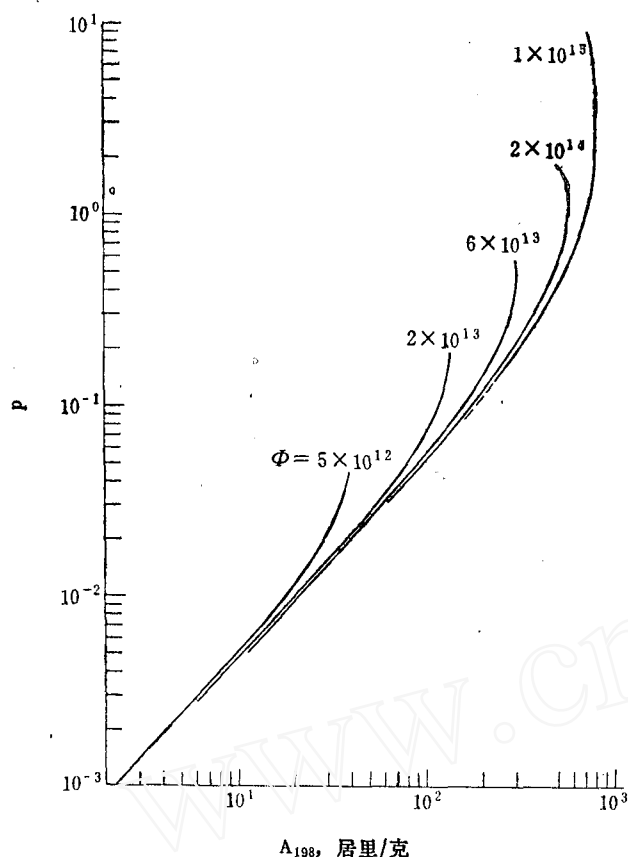


图6 不同通量下的 p - A_{198} 关系

产品中 ^{199}Au 含量增加也不大(图6)。

最后要指出的是,以上结论(采用高通量、短时间照射产生的二次俘获产品比例较小)并不对任何存在二次俘获反应的情况都适用;而且我们的计算试验表明,这结论成立与否和各项核参数并不存在简单明了的关系。可靠的办法是对具体问题进行分析^[6]。通过深入细致的计算分析,经实践检验,选择合理的照射条件,对同位素生产、活化分析等都是重要的。

参 考 文 献

- [1] El Guebeily, M. A. et al., *Radiochim. Acta*, 2, 217 (1964).
- [2] IAEA, *Radioisotope Production and Quality Control*, Vienna, 1971, p. 185.
- [3] 徐新等, 胶体金- ^{198}Au 的放射性核纯, 内部资料(1978).
- [4] 同[2], p. 223.
- [5] Capgras, Andree, CEA-R-3239, 1967.
- [6] 徐新, 科技, 1, 34(1980).

产品中 ^{199}Au 含量反而增加了。如有的国家用 5×10^{12} 照7天^[4],这时 $A_{198}=33$ 居里/克, $p=2.62\%$;若采用 1×10^{14} 照射4小时,则 $A_{198}=33.5$ 居里/克,而 $p=1.61\%$ 。

总之,理论计算分析表明,对于 ^{198}Au 的制备,在反应堆照射时间控制允许的范围内,应选用尽可能高的通量照射(图6)。

出于中子谱的考虑,中子通量高处一般说谱也硬些(在同一堆中),这也有利于减少 ^{199}Au 的生成^[3,5]。

当然,生产实践中堆照条件的选择,还要综合考虑所拥有的堆通量客观条件,对产品规定的 ^{199}Au 含量限度,以及其他经济、技术因素等等。如果要达到的 ^{198}Au 比度不很高(例如 <50 居里/克),则用较低的通量($\geq 2 \times 10^{13}$)照射较长时间,所得产

THEORETICAL YIELDS OF ^{198}Au AND ^{199}Au AND THE SELECTION OF IRRADIATION CONDITIONS.

XU XIN

(Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275, Beijing)

ABSTRACT

The preferable reactor irradiation conditions in the production of ^{198}Au are discussed, based on the theoretical calculation of the ^{198}Au and ^{199}Au yields. The results suggest that, contrary to what most countries in the world are doing, high neutron flux and short irradiation time should be applied in order to obtain a given specific radioactivity of ^{198}Au with minimum content of ^{199}Au , which is produced by a second neutron capture reaction from the gold target.

国 外 学 术 会 议 消 息

- ★ 1980年3月23—28日, 美国化学学会在休斯顿召开第179次全国会议。会上核化学和工艺学方面讨论下述论题: 用核粒子和介子入射粒子在中能区的核反应; 核法和化学法年代测定技术; 穆斯鲍尔谱法在化学领域中的最近应用; 高能反应和远离稳定线的核; 短寿命核和奇异核。在化学教育分组上还有激光法同位素分离的报告; 在地球化学分组中要讨论稳定同位素在天然气和石油勘探和相关关系研究中的作用。
- ★ 1980年4月14—18日在美国密苏里州哥伦比亚市召开第四届国际环境和能源研究中的核(技术)方法会议。主要议题有: γ 射线和X射线谱法的发展; 软件和数据分析的数学方法; 能量生产和应用过程中的核方法; 能源勘探过程中的核方法; 环境监测中的核方法; 大气研究中的核方法; 水研究中的核方法; 生物和医学中的核方法; 示踪应用中的核方法; 核方法学和原子方法学。会议由美国核学会、美国能源部和密苏里大学等联合发起。
- ★ 英国化学会分析化学分会放射化学方法组发起了题为“现代放射化学实践”的国际讨论会, 将于1980年9月29日至10月3日在英国约克大学召开。会上还举办有关仪器设备的展览会。会议主题为: 加速器和反应堆在核化学中的新应用; 锕系元素的生产、分析和监督保障; 短寿命放射性核素; 放射性标记化合物的合成; 示踪元素在科学技术中的新应用; 测量和数据处理的进展。据称, 会议的目的是汇集有关同位素化合物的制备、生产和分析各方人员交流思想和经验。