

缺中子同位素的生产和应用

张维成

加速器在发现放射性核素上,在早期同位素应用中,作出了自己的贡献。1946年后反应堆生产放射性核素,开始供应各方面的需要,以及从核燃料废水提取放射性核素的发展,使器生产核素受到一定程度的忽视。实际上,器的生产具有自己的特点。缺中子同位素的广泛应用及其技术的发展,加速器不断改进、兴建以及生产工艺的发展等,对器生产核素又引起了新重视,现在又出现了专用的生产放射性核素的加速器。1955年英国伦敦哈默史密斯医院建立了第一台专用的加速器以来,到1983年前,据不完全统计,已有114台各类加速器用于核素的生产。预计今后十年内,在美国和欧洲一些国家的每一大城市,至少将建造一台回旋加速器进行医用核素的生产等。

一、缺中子同位素的广泛应用

放射性核素的应用,现在可以说已深入人类生活的各个方面⁽¹⁾。核素及其制品种类繁多,产品不断向高比度、高强度、高纯度发展,新产品、新方法、新靶子层出不穷。核素的生产不但用反应堆,还大量研制成了一系列专用的中小型回旋加速器,也试图采用中子发生器试制放射性核素⁽²⁾,这可使一

些医用核素就地生产、就地应用,特别是缺中子同位素在应用中的独特作用,引起人们越来越多的注意。近年来新开发的重要的核素中,缺中子同位素比丰中子同位素要多,医用短寿命核素发生器中,缺中子核素发生器也多得多,又如制作穆斯堡尔源的一些重要核素以及医学诊断上关键性的核素碳-11、氮-13、氧-15和氟-18等都是缺中子的。完全可以预计,缺中子同位素的应用将会越来越广。

二、回旋加速器是生产放射性核素最理想的工具

缺中子同位素应用的发展,与加速粒子的技术、加速器的建造发展分不开的。由于加速器类型、数量不断增加,被加速的粒子能量不断提高,粒子的种类不断增加,促使核物理实验不断提供各种核反应的核参数,这些成果正促进了放射性核素试制、生产不断向前发展、应用范围不断扩大。尽管说各类加速器都能进行放射性核素的试制、生产,但效果是不相同的。一些低能的加速器如高压倍加器、静电加速器束流强度较大,但粒子能量太低没有多大优点。一些高能加速器如同步稳相高能粒子加速器等,流强低、产量

号,可以预料,它们将在核物理实验中特别是在粒子鉴别的工作中起到越来越大的作用。

参 考 文 献

(1) C. R. Gruhn et. al., Nucl. Inst. & Meth. 196(1982)33

(2) C.H. Schiessl et. al., Nucl. Inst. & Meth. 192(1982)291

(3) H. Ikezoe et. al., Nucl. Inst. & Meth. 196(1982)215

(4) J.M. Asselineau et. al., Nucl. Inst. & Meth. 204(1982)109

(5) A. Moroni et. al., Nucl. Inst. & Meth. 225(1984)57

小、造价和运行费用高，产物复杂等也不理想。近年来生产实践经验表明：中小型回旋加速器，是当前世界各国生产放射性核素最理想的工具。它具有⁽²⁾

1、能量适中，能调节带电粒子从低的一点到高的任一点，对选择合适的核反应，降低副产物十分有利。

2、流强足够，能得到较高的产额。

3、可加速多种粒子：P、D、 α 、 ^3He 及C、N、O等重粒子。

4、机器尺寸紧凑，造价比较便宜，操作运行方便，还可做其它多种用途。

回旋加速器建造50多年来不断地得到发展，最初采用平面型极向磁场，以后建造了等时性回旋加速器，从而克服了被加速粒子对能量的限制，近年来还准备在回旋加速器中采用超导磁场。其应用范围已从核物理基础研究方面扩展到放射性核素生产、活化分析、中子治癌等许多方面。

我国从50年代后期到现在，先后在北京、兰州、上海、成都建成了四台普通的回旋加速器，除了开展核物理研究外，也进行了放射性核素的生产等。兰州的加速器生产了 ^{57}Co 制作穆斯堡尔源⁽²⁷⁾，医用 γ 照像机的校正源(点源和面源)⁽⁴⁾，X荧光源及提供 ^{57}Co 合成争光霉素(博莱霉素)等，生产 ^{109}Cd 作X荧光源⁽⁵⁾；也试制、生产了 ^{58}Co 、 ^{22}Na 、 ^{85}Sr 、 ^{54}Mn 、 ^{207}Bi 、 $^{68}\text{Ge}-^{68}\text{Ga}$ 发生器及 ^{187}Tm 等。上海的器生产了二千多毫居里的 ^{67}Ga 及一些 ^{111}In 供医院对肿瘤进行诊断研究，生产 ^{74}As 供农业科学上应用，还生产了 ^{85}Sr 、 ^{197}Hg 、 ^{24}Na 、 ^{42}K 等。成都的器也装了内靶开始试制 ^{67}Ga 等。

用器生产放射性核素，最常用的是7-10MeV/核子的回旋加速器^(6,7)。通常质子能量在10MeV以上，氦核能量也大于10MeV， ^3He 在20MeV以上， α 在28MeV以上⁽⁸⁾。国外六十年代中期以后，生产放射性核素的小型回旋加速器的研制工作代替了小型的生产核素反应堆的研制。因器比堆操作方便、造

价低、废物少、核素品种多，能作多种其它用途。近年来已研制成了一系列生产放射性核素的小型回旋加速器，为缺中子同位素广泛应用开创了良好的条件。小型器体积小，可放在桌子上，造价低、为中型的四分之一到十分之一，本身有防护壳，操作只要掀按钮，好像一台仪器一样，生产 ^{11}C 、 ^{13}N 、 ^{15}O 和 ^{18}F 等短寿命缺中子同位素的能力却相当强，又能进行辐射治疗和开展核分析等其它用途。寿命较长的一些核素可在中型、大型回旋加速器上生产，以使这些核素的供应变得多而廉。看来有希望主要采用中小型回旋加速器逐步解决缺中子同位素的供应问题(表1)。

三、使用缺中子同位素条件的发展

在40—50年代放射性核素应用上，基本上都是采用由反应堆生产的寿命较长、中子过剩的核素。近年来，特别是医用核素应用上多采用短寿命、能量适中及单一的核素。这些都是与探测技术发展分不开的。四、五十年代的探测技术对 β^- 射线比较有效。近年来，半导体探测器(特别是Ge(Li)探测器)和小型(微型)专用计算机的发展推动了低能、短寿命核素更广泛地深入各个学科领域。医学上使用短寿命核素，使病人和工作人员所受的剂量降低，有较高的测量精确度，允许进行反复诊断而不受患者过去曾使用过该核素的限制，废物处理及环境污染问题大为减少等优点⁽⁹⁾。这些优点只有当闪烁照像机、多丝正比照像机、正电子照像机、放射性核素计算机处理断层扫描机(ECT)等研制成功才能得到发挥。例如采用ECT时，不但可分层显示出脏器的形态学变化，而且可以观察到脏器的功能动态性改变，放射性药物在脏器内代谢分布等。现已成功地将ECT用于测量 ^{18}F -2-去氧葡萄糖大脑横切面内的分布，大脑的葡萄糖新陈代谢率、脑部疾病的诊断及测定

表 1 各种类型回旋加速器生产放射性核素的能力

| 类别 | 型号举例 | 磁场 | | | 功率 消耗 (kW) | 粒子最大能量 (MeV) | | | | 最大束流强度 (μA) | | 国外价格 (\$) | | | 生产核素能力 | | | | | | |
|-----|-----------------|------------|-----------|-----------------|------------------|--------------|-----|--------|--------|--------------------|----|-----------|----|-----------|--------|-----|----|----------|---------------------------------------|--------|----------|
| | | 直径 (cm) | 重量 (吨) | 平均 磁场 (K) | | p | d | 4He | 3He | 内 | 外 | (\$) | 品种 | 半衰期 | 每小时产量 | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | 200 | 50 | <200,000 | $^{15}O, ^{13}N, ^{11}C,$ ^{18}F | 2—100分 | 20—100mc |
| 超小型 | | 60 | 7.5 | | 40 | 9.4 | 4.7 | 9.5 | 12.5 | 200 | | | | | | | | | | | |
| 小型 | CS-22 (AVF) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | 97 | 24 | 16 | 200 | 22 | 12 | 24 | 36 | 100 | | 400,000 | | 50 | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 中型 | Alomta (AVF) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | 140 | 75 | 15 | 400 | 28 | 17 | 34 | 44 | 100 | | 2,000,000 | | 100 | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

| 加速系统 | 粒子种类 | 粒子数 | 束流强度 (粒子/秒) | 束流能量 (MeV) | 靶子 | 靶子厚度 (mg/cm ²) | 产物 | 产物半衰期 | 产物活度 (mc) |
|----------|--|------|-------------|------------|------|----------------------------|------------|-------------------------|-----------|
| | ¹⁵ O, ¹³ N, ¹¹ C, ¹⁸ F | 1717 | 4000 | 4.6 | 2500 | 500 | 29,000,000 | 22.4小时 | 4000mc |
| TRIUMF | | | | | | | | 8.2小时 | 5000mc |
| | | | | | | | | 78小时 | 2300mc |
| | | | | | | | | 13.3小时 | 9000mc |
| | | | | | | | | 288天 | 6000mc |
| | | | | | | | | 2.6天 | 220mc |
| | | | | | | | | 38年 | 16mc |
| 大型 (AVF) | | | | | | | | 270天 | 2mc |
| | | | | | | | | 73小时 | 40mc |
| | | | | | | | | 47年 | 1800mc |
| | | | | | | | | 260年 | 1mc |
| | | | | | | | | 64.8天 | 200mc |
| | | | | | | | | 33年 | 1100mc |
| | | | | | | | | 106天 | 25μc |
| | | | | | | | | 7.2 × 10 ⁵ 年 | 3000mc |
| | | | | | | | | | 0.12μc |

血流量、血容量、新陈代谢等既显示了缺中子同位素在应用中的独特作用,更有力的推动了核医学的发展⁽¹⁰⁾。

四、加速器生产放射性核素工艺流程的不断改进

加速器生产放射性核素时,所生成的核素与靶元素不同,易于进行化学分离,可获得高比度、无载体的核素,能满足某些特殊要求。例如制作⁵⁷Co穆斯堡尔源,对⁵⁷Co产品纯度要求较高,杂质总含量小于0.12微克/mc⁵⁷Co,即要求⁵⁷Co与靶元素和其它杂质分开,也要求产品中稳定性钴含量尽量降低或不含稳定性钴,才能保证制作出谱线窄的峰无劈裂的穆斯堡尔源^(11,12)。为降低稳定性钴含量,我们曾用过两种办法:一是对靶材料在照射前进行纯化,降低或除尽微量的稳定性钴;另一种办法是利用核衰变特性和放射分离法相结合,进行钴的同位素分离。如用 α 粒子照射镍,照射后立即进行分离,先除去稳定的微量钴和由核反应⁵⁸Ni(α , α p)⁵⁷Co生成的⁵⁷Co,经冷却,再从镍靶中分离出由核反应和衰变⁵⁸Ni(α , α n)^{36小时}⁵⁷Ni \rightarrow ⁵⁷Co得到的⁵⁷Co⁽¹³⁾。这些表明,器生产核素的工艺比堆生产的要复杂得多。首先要获得所需能量和束流强度的离子束,并选择合适的核反应,获得最大产额。然后根据靶子物的形态,采用不同的照射装置。如金属状、粉末状、气态、液态等各不相同。还要考虑靶子的冷却问题,靶子装卸和处理要考虑防护问题,短寿命核素要考虑快速或进行加速器在线操作合成标记化合物,对医用核素还有药物要求等。对于一个特定的核反应,入射粒子能量要多大,靶要多厚,流强如何,照射时间多长,才能达到产率最高,质量最好。为此应有一些表示带电粒子核反应产率的基础数据和基础单位,这个问题当前尚没有统一的看法。目前表示带电粒子核反应生

产放射性核素产率的方法主要有三种:激发函数曲线、产率和厚靶产额。

激发函数曲线:通常采用叠箔技术来测量。1972年 Waston等人创建了旋转轮靶系统来测量激发函数曲线⁽¹⁴⁾。本法可利用被加速粒子最大能量,同时照射12个以上靶子,能很快获得可靠的重复数据,精确度也高。同时采用量热法束流积分系统,比采用法拉第筒法好,设备简单,也不受低能次级电子的影响,容易进行绝对测量等。

产率(R)和厚靶产额(y),它们之间关系如: $R = y/\lambda$ 。y也可由下式表示:

$$y = 6.3 \times 10^{12} \frac{n\lambda}{ZI_0} \int_0^{X_s} I(X) \sigma(X) dX$$

表2列出用厚靶产额计算公式所得的结果⁽⁸⁾。从表2可看出用(p, n)(p, 2n)核反应较好,可获得较多的品种。实际上选择核反应等也要由器的具体条件和产品纯度来决定。如采用早期建成的普通的1.5米回旋加速器试制⁵⁷Co,由于它所加速的质子能量不够高,尽管采用质子轰击的实际产额比采用氘核要高一个数量级,也只能采用⁵⁶Fe(d, n)⁵⁷Co核反应来获得⁵⁷Co。为了降低⁵⁶Co的产额,氘核的能量在7.5—8.0MeV范围内较好⁽¹⁵⁾。

辐照可采用内、外靶装置。苏联奥布宁斯克物理动力研究所采用转动式内靶,固定式的内、外靶生产了42种放射性核素⁽¹⁶⁾。美国麻省理工学院也采用过旋转靶和振动靶⁽⁷⁾。随着生产不断向前发展,辐照装置也不断进行改进。英国医学研究委员会⁽¹⁷⁾,美国橡树岭国立实验所⁽¹⁸⁾,斯龙凯特林学院⁽⁸⁾等单位采用“擦过”入射技术,即使靶表面与粒子束构成较小的角度来增加受粒子束轰击的面积。苏联物理动力研究所又设计出新的靶子装置⁽¹⁹⁾,在靶背面形成接触冷却水的肋,在同功率水平下,采用肋靶可以使靶面温度比一般靶低得多,因而提高了承受束流的能力。南非勃列托利亚回旋加速器设计安装了快速装卸的靶系统⁽²⁰⁾。日本辐照

表 2

对几种核反应计算所得的产额

| 能量 (MeV) | | 8 | | | 17 | | | 16 | | | 24 | | | 32 | | | |
|------------------|-----------------------------|--------|-------|-------|-------|------|-------|-------|-------|------|-------|-------|-------|-----|-------|-------|------|
| 原子序数 (Z) | 20—40 | | 41—60 | 61—83 | 20—40 | | 41—60 | 61—83 | 20—40 | | 41—60 | 61—83 | 20—40 | | 41—60 | 61—83 | |
| | 产 额 mc/ μ A·h | (d, n) | 145 | 0.3 | | 40.1 | 1.8 | | | 59 | 3.4 | | | | | | |
| (d, 2n) | | 0.5 | 0.3 | | 44.2 | 3.5 | 3.4 | 188 | 17.4 | | | | | | | | |
| (p, n) | | | | | | | | | 273 | 117 | 2.4 | 359 | 160 | 2.9 | 383 | 171 | 3.1 |
| (p, 2n) | | | | | | | | | 22.8 | 76.5 | 122 | 338 | 616 | 405 | 611 | 983 | 542 |
| (α , n) | | | | | | | | | 3.6 | 0.8 | 0.04 | 20.5 | 6.6 | 1.7 | 27.1 | 8.2 | 2.4 |
| (α , 2n) | | | | | | | | | | | | 5.6 | 2.9 | 2.1 | 33.1 | 16.2 | 18.2 |
| (α , p) | | | | | | | | | | | | 19.8 | 40.4 | | 25.5 | 69.2 | |

研究所采用多靶组合装置⁽²¹⁾，让60MeV质子连续通过NaI粉末、铜箔和水靶，充分利用束流，同时制备了¹²³I、⁶²Zn和¹³N。英国哈默斯密斯医院的回旋加速器上实现了多靶辐照的束流分配技术⁽⁸⁾，配备了自动移束装置，保证了机器能够非常迅速的从一种工作状态转向另一种工作状态。美国斯龙凯特林学院不仅为新建的紧凑型(CS-15)回旋加速器，设计安装了适宜的靶系统，而且发展了靶子制备的新技术⁽²²⁾。另外不少的回旋加速器上还设计安装了气体靶和液体靶。

缺中子同位素的广泛应用，不仅要求对同位素增加数量，还要求提高质量。美国布鲁克海文实验所将碲富集，由¹²³Te(³He, 3n)¹²³Xe, ¹²⁴Te(³He, 4n)¹²³Xe核反应及¹²³Xe

$\beta^+EC \rightarrow$ ¹²³I得到的¹²³I，大大降低了¹²⁵I、2.1小时

¹²⁴I等沾污，纯度达99.8%，只有 $\leq 0.2\%$ ¹²⁵I沾污⁽²³⁾。从镍靶中分离⁵⁷Co通常采用常规的离子交换法⁽¹³⁾。近来苏联的库列也夫等采用快速、高效的萃取色层技术，获得更满意的结果⁽²⁵⁾。从铁靶中分离⁵⁷Co，通常采用异丙醚萃取除去铁，离子交换法纯化钴-57。我们采用磷酸三丁酯萃取——离子交换法分离纯化⁵⁷Co，使⁵⁷Co的损失由4%以上降到0.2%⁽²⁴⁾。美国橡树岭国立实验所在1970年

前就开始生产⁶⁷Ga，对从锌靶中分离、纯化⁶⁷Ga进行了改进和提高，后来改用富集的⁶⁸Zn电镀在铜靶上制成内靶，比天然锌有更高的产率，不仅使化学分离更快，也降低了⁶⁸Ga的沾污，纯度更适合医用要求，同时也制定了回收⁶⁸Zn的程序，降低了生产成本⁽²⁶⁾。

参考文献

1. 张维成 核物理动态 1,2,35 (1984)
2. 张维成 原子能科学技术 3, 366 (1981)
3. K. Svoboda, Radioisotope Production and Quality Control, IAEA Techn. Rpt. Ser., No.128 (1971)
4. 张维成等 原子能科学技术 4,431(1979)
5. 张维成等 中科院近物所年报 123(1983)
6. M. M. Ter-pogoston, Nucleonics 24 10, 50 (1966)
7. M. S. Livingston J. Appl. Phys. 15 128 (1944)
8. Fifth Inter.Cyclotron Conference (1969)
9. 叶杖正照 原子力工业 11,13 (1979)
10. 赵惠扬 核仪器与方法 2,26 (1981)
11. 张维成等 科学技术报告汇编(第五集,近物所) 166 (1981)
12. 张维成 核物理动态 2,1 (1985)
13. 张维成等 核技术 6,55 (1984)
14. I. A. Waston, et al., Nucl. Instr.