

放射源的制备技术及其应用

张华明

(中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900)

摘要: 介绍了放射源制备的主要技术、我国放射源研究和应用现状, 提出了我国在放射源制备和应用方面需要重点关注的方向, 以推动放射源在科学研究、医学和工业自动化等领域的应用。

关键词: 放射源; 制备技术; 应用

中图分类号: TL92 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-7512(2009)01-0054-06

Preparation Technology and Applications of Radioactive Sources

ZHANG Hua-ming

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

Abstract: Several methods for the preparation technology of radioactive sources were described, such as pottery molding, enameled, vitrification, powder metallurgy, electroplating, activating, etc. The applications of radioactive sources in China were introduced briefly and several factors of restricting their development were evaluated. The preparation technology and applications of radioactive sources in China were discussed, such as those of the ^{238}Pu source, all kinds of medical brachytherapy sources, and nuclear instruments containing radioactive sources, etc.

Key words: radioactive sources; preparation technology; applications

核技术在科学研究、医学及工业等领域的应用中很重要的一个方面就是以放射源为基础的射线应用技术。尽管目前放射源的制备技术相对于核技术应用的其它领域而言未有革命性进展, 但是, 一些新的放射源制备技术及应用领域值得关注, 如用于温差热电 (Radioisotope Thermoelectric Generator, RTG) 同位素电池的特种源、医用近距离治疗源及源机一体化设备的开发等对促进我国科学发展、医学和工业进步等具有重要意义。

放射源的分类有多种方法。按射线种类分则有 α 源、 β 源、 γ 源、中子源等; 按用途分则有仪器仪表源、医用源、标准源、刻度源等; 按源的制备方法分则有粉末冶金源、搪瓷陶瓷源、电镀源、气体源等。但一般分为密封源和非密封源两大类, 通常情况下应用的放射源是密封源, 非密封源只在数情况下应用。

在设计和制备放射源时要考虑源的辐射种类、能量和强度能否满足使用要求, 源的有用辐射效率高及安全性能好, 确定这些原则后, 才能

决定所采用的放射性核素,再根据放射性核素的物理化学性质和使用要求确定制备工艺。

以下在介绍放射源的制备技术及其应用的基础上分析影响我国放射源制备技术发展和应用的因素,并结合我国实际需求,提出应重点加强研究的方向,以引起国家、科研机构和生产者对放射源制备及应用的重视。

1 放射源的主要制备技术

放射源的制备主要包括放射源芯活性块制备、源芯的密封以及产品源的质量检验等,放射性核素发射的射线种类、放射性核素的物理化学性质等都可决定放射源的制备方法。经过多年发展,放射源制备的主要技术有陶瓷搪瓷、玻璃法、粉末冶金、电化学法、直接活化法、吸附法等,其它不常用的如真空升华法、电溅射法等^[1]。

1.1 陶瓷、搪瓷、玻璃法

将放射性核素的氧化物同陶瓷、搪瓷、玻璃料和其他辅料混合在一起,将共混好的物料置于模具内,压制成型,利用高温烧结,制成含放射性同位素的陶瓷、搪瓷和玻璃体圆片或圆柱等形状,获得放射性活性块。¹³⁷Cs 源有多种制备方法,其一是用玻璃体制源法;⁹⁰Sr-⁹⁰Y 仪表源采用陶瓷制源法。在制备 γ 放射源和高能 β 源时,多数情况是将放射性同位素掺到面釉料中,而不是直接将放射性物质与陶瓷、搪瓷、玻璃料混合,将放射性物质烧制到陶瓷体表面,尽量减少辐射在活性区的吸收。

例如,¹³⁷Cs 做为厚度计、料位计、密度计及核子秤等用源,可采用玻璃制源法:将¹³⁷Cs 加入玻璃原料中,烧结成玻璃体,源芯用氩弧焊密封在双层不锈钢(1Cr18Ni9Ti)源壳内,其结构示于图 1。

由于采用陶瓷、搪瓷、玻璃等材料,因此,所制备的放射源具有耐高温、耐辐射等优点。

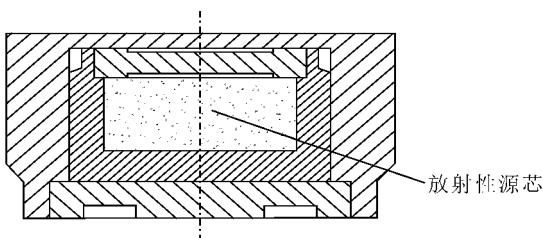


图 1 ¹³⁷Cs γ 源结构示意图

1.2 粉末冶金法

¹⁴⁷Pm、²⁴¹Am 以稳定的氧化物或其它化合物形态制成粉末,如¹⁴⁷Pm 制成¹⁴⁷Pm₂O₃、²⁴¹Am 制成²⁴¹Am₂O₃,或者其它稳定化合物。粉末制备时,在含¹⁴⁷Pm 或²⁴¹Am 的酸性溶液中加入碱性溶液液控制 pH 及氢氧化物沉降速度^[2],有利于制备粒径更小、更均匀的颗粒;将制成的颗粒与金粉或银粉混合烧结成坯,将毛坯夹封在金属材料中,轧制成箔源。一般源的厚度为 0.1~0.2 mm,长度>1 m。对轧制出的箔源带,根据实际需要进行剪切,切口处实施冷焊,有时还需加保护膜,箔源固定在源托中。图 2 是一个典型的¹⁴⁷Pm 源的结构示意图。

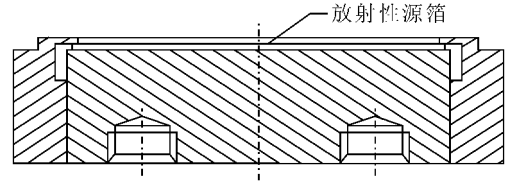


图 2 ¹⁴⁷Pm 放射源结构示意图

1.3 电化学法

电化学法包括电镀法(含分子镀)和共电沉积法。电镀法是将放射性物质配制制成电镀液,电镀液中含有的放射性金属离子在适当电压下向阴极移动,在阴极表面还原为金属,或以某种化合物形式沉积在阴极(源托)表面,成为放射源。源托一般为不锈钢、铂等化学惰性和高强度的金属。放射源质量取决于电镀液的组成、性质、温度、电流密度和电镀电压等^[3],采用电镀制源的放射性核素主要有²³⁵U、⁶³Ni 等。

共电沉积法是在含 Am 或 Pu 或 U 的水溶液中加入 Au 或 Ag,使 Am 或 Pu 或 U 共沉积在阴极表面,制备成高比活度的标准源或刻度源。

1.4 直接活化法

如⁶⁰Co、¹⁹²Ir 等放射源,直接将金属 Co、Ir 加工成型后,放入反应堆内辐照,如 Co、Ir 的棒或板用机械加工的方法,加工成源的最终形状如针、板、圆片、圆柱等,清洗油污和氧化物后,干燥,装入铝桶内,焊接密封,检漏后入堆。根据产品源的活度要求,按照理论计算和反应堆的具体参数确定照射时间,置于热中子通量较高的孔道进行照射,出堆冷却、切割、清洗、干燥、装配、焊

接密封、检漏、质量检验等,最后制成源。鉴于 ^{60}Co 、 ^{192}Ir 等放射源的射线能量高、放射性活度大等原因,一般质量检验项目,如机械强度、耐冲击、刺穿、振动、密封性等以大量冷实验结果为主,但源表面放射性污染必须按国家标准进行测试,其放射性活度应低于 185 Bq 。

1.5 化学吸附及交换置换法

此方法制备的放射源比较典型的是医用近距离治疗用 ^{125}I 种子源。它是将 ^{125}I 吸附在由银丝、铱丝、陶瓷珠等做成的源芯上,然后将源芯密封在钛管中。常见的银丝对 ^{125}I 的吸附方法有:银丝直接对 ^{125}I 进行吸附;银丝经双氧水、盐酸体系氧化氯化后对 ^{125}I 进行吸附。以上吸附方法存在吸附时间较长,吸附容量有限等缺点。为克服这些缺点,可对银丝进行特殊处理,增强其对 ^{125}I 的吸附。目前成熟的结构和几何尺寸为

内置全杆标记碘(^{125}I)的钽丝,外壳为高密度钛合金管组成,其结构示意图示于图3^[4]。

1.6 气体放射性同位素源的制备

由于 ^{85}Kr 等以气体状态存在,制备放射源时需要特殊的工艺技术,标准的 ^{85}Kr 源结构及主要工艺标注示于图4^[5]。主要工艺为将有源窗的容器抽足够真空度后,充入 ^{85}Kr 气体,密封,焊接,检测有无放射性 ^{85}Kr 泄漏。还可以将 ^{85}Kr 吸附在活性炭上,制备高比活度、小体积的放射源。

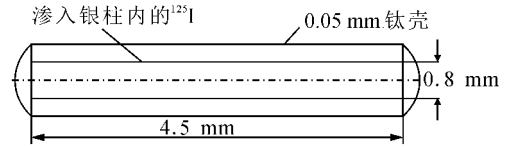


图3 ^{125}I 种子源结构示意图

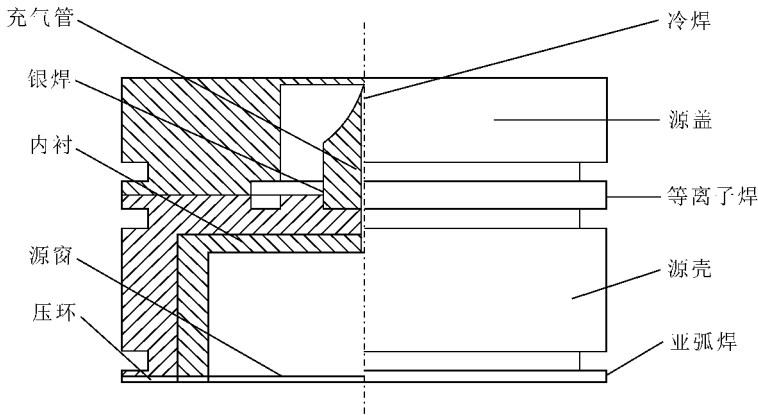


图4 标准的 ^{85}Kr 源结构图及主要工艺标注

1.7 其它方法

放射源的制备还有其它方法,如有机合成法, ^3H 、 ^{14}C 、 ^{15}N 等通过有机合成的方法制成有机薄膜,然后制备成标准源和辐射源。真空蒸发升华法,将放射性核素在真空中加热蒸发,升华到温度较低的底片上,成为放射源等。

2 我国的放射源制备技术及其应用

2.1 放射源研究及其应用的历程和现状

我国的放射源制备从早年归国学者利用从国外带回的放射性同位素进行基本物理学研究时才开始起步,有记载的放射源应用是1937年北京协和医院用 ^{226}Ra 源进行医学治疗,但真正能制备放射源并满足国防、科学、工农业、医学等

需要是1958年中国原子能科学研究院的反应堆建成之后。经过近50年的发展,我国的放射源制备技术逐步与国际接轨,在某些特殊放射源的制备和生产方面已具有独特的优势。

目前,我国可以制备 ^{147}Pm 、 ^{85}Kr 、 ^{238}Pu 、 ^{241}Am 等放射源,用于纸浆浓度仪、纸张测厚仪、静电消除仪和火灾报警器等;可生产 ^{32}P 、 ^{90}Sr 、 ^{90}Y 医用敷贴治疗源;采用新的技术,用于心血管狭窄治疗的放射性支架源已研制成功。以氚靶为核心的中子源用于石油测井仪、水分检测仪等。中国原子能科学研究院研制了可用于核电站反应堆启动用的 ^{210}Po -Be中子源^[1],但我国核电站目前仍以进口 ^{252}Cf 中子点火源为主。

核仪器仪表尤其是集装箱检测成像装置与

工业 CT,以清华大学为代表的研究和生产机构已成为国际领先者之一。目前,该领域研究的重点是工业自动化控制仪器仪表、反恐监测仪、无损分析仪等。

2.2 制约我国放射源制备及应用发展的主要问题

总体来说,国内反应堆制备的放射性同位素,主要用于研究和生产小型、低比活度的科学研究、仪器仪表、医学研究或临床治疗等放射源。高比活度、大型工业辐照装置用源只能从国外进口或二次加工,如辐照用高比活度 ^{60}Co 、 ^{192}Ir 源等。

近年来,相对其它核技术的应用领域而言,国内发表的有关放射源制备及其应用的论文量较少,国内学术交流会议也很少见到相关成果的报道,原因除了放射源制备技术发展比较完善、其它技术逐步取代放射源的应用和成本因素等外,制约我国放射源制备和应用发展还有以下主要因素。

第一,放射性同位素原料短缺。受国内反应堆技术条件限制,放射性同位素极其缺乏,主要表现在超铀元素,如 ^{238}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{252}Cf ;裂片元素,如 ^{147}Pm 、 ^{85}Kr 、 ^{90}Sr 、 ^{90}Y 等,以及高比活度、大剂量的 ^{60}Co 、 ^{192}Ir 等,这些元素目前只能通过进口以缓解国内需求矛盾。

第二,在某些领域的放射源应用未引起足够的重视,如生物学、医学等用放射源未得到重视,尤其是医学近距离治疗(Brachytherapy)和体内植入治疗源,这些源要求几何尺寸小(一般在微米到毫米范围,有的甚至几十个纳米)、剂量准确、比活度高等;其形状有圆柱、微球、弹簧、支架、薄膜和涂层等,可以针对不同部位、组织和器官肿瘤进行治疗,这方面的研究国外的专利^[6-8]较多。此类放射源制备的关键技术在于控制放射性同位素均匀地涂布(或电镀、沉积)在结构不同的衬底上,并能将放射性同位素密封住,使用和体内留置时不发生放射性脱落。国内文献公开报道和专利申请仅限于放射性支架、敷贴器等少数几种,与国外相比,无论是近距离治疗用放射源、种子源,还是有针对地对组织和器官进行治疗的放射源都太少,尚未引起国内研究机构的足够重视。

另外,非常规科学探索研究(深空、海洋、极地等)所需同位素电池,包括功率在瓦级或上百瓦级的大型同位素电池、纳瓦至毫瓦级的微型同位素电池等都需要性能优越的放射源驱动,我国

在这这方面的工作远不能满足需求。

第三,含源自动化仪器仪表研发和应用还不能完全满足工业进步的需求。除了辐射加工外,放射源的主要应用领域就是核仪器仪表,利用射线的散射、衍射、物质对射线吸收后的辐射效应,研制各种工业自动化、无损检测等所需的核仪器仪表,用于质量控制、在线监测等目的。该技术因其能提高生产效率、降低能耗、提升产品质量,目前已广泛应用于各种工业管道的检漏、生产线在线运行监测,大型化学合成塔器日常监测等方面^[9]。而国内核仪器仪表研究和应用,特别是在工业领域的应用与发达国家之间还存在一定差距^[10-11],主要表现在产品种类少、企业规模小和创新能力不足等方面。

第四,政策法规和政府管治太严。国家为保护民众的安全和健康,出台的法规愈来愈严格,控制也越来越紧,环评、安评以及各种审查所带来的成本限制了研究、生产和使用放射源的积极性,不利于推动放射源及相关产业的发展。

3 我国放射源研究和应用重点关注方向

针对上述存在的主要问题,根据我国目前科学研究、医学、工业发展和反恐的需要,认为应重点关注以下几个方面。

3.1 解决超铀、裂片和高比活度放射性同位素来源

对于急需的放射性同位素,尤其是具有重大国防意义和影响国计民生的放射性同位素,今后在新的反应堆立项时,要充分论证,全国通盘评估和考虑。秦山核电站三期工程中拟开展 ^{60}Co 生产是一个解决放射性同位素来源的较好方式,当然也可在后处理工厂强化超铀元素如镅、钷、镧、铈和裂片元素如钷、铈、铉、铊等的分离制备;同时,在生产能力建设方面,与新建堆和已有堆配合建立先进的分离、纯化生产线,生产高品质的放射性同位素,以满足国防、科学研究和工业制备放射源的需要。

3.2 生物、医用放射源和放射同位素电池所需要的热源制备

3.2.1 生物、医用近距离治疗(Brachytherapy)放射源 放射源应用最活跃的领域之一是近距离治疗,如 ^{90}Y 、 ^{32}P 、 ^{192}Ir 、 ^{60}Co 和 ^{252}Cf 源^[12],有支架源、种子源(^{125}I 、 ^{103}Pd)、微米或纳米微球源、线状导管类放射源等。国际上近距离治疗源用于腔体内植入、体表瘤(疤痕)、心血管疾病、实体

瘤、泌尿系统增生以及肿瘤等治疗,相对于核药物,近距离治疗源密封性良好,可以减少病人正常组织的辐射和环境的放射性污染,还可借助精确的剂量控制和计算机辅助系统,实现肿瘤精确定位,达到了较好的治疗效果,国内这方面的研究工作还需要加强。

3.2.2 同位素电池所需的放射源 外太空探索科学研究中,需要稳定、长寿命、结构紧凑、安全、全天候的电源和热源以保证星载设备的连续工作和保温, ^{238}Pu 驱动的RTG(Radioisotope Thermoelectric Generator, RTG)同位素电池和热源(Radioisotope Heater Unit, RHU)是较佳的选择。目前需要重点解决 ^{238}Pu 源的均匀性、自吸收、提高比活度以及卫星发射过程中强力冲击下的安全问题^[13]。此类同位素电池所需要的 ^{238}Pu 大型放射源的制备国内刚起步,技术上还需要不断完善和创新,以支持外太空科学探测对同位素电池的需求。

往复自震荡悬臂梁型、辐射伏特效应型等微型同位素电池需要重点解决放射源所用核素的选择、来源和制备问题,尤其是辐射伏特效应型微型同位素电池,需要与半导体器件相适应的核素,既可满足最大限度的功率输出,又要避免器件的辐射损伤。

3.3 高比活度、小尺寸的 ^{60}Co 、 ^{192}Ir 等放射源及含源核仪器仪表的研制与应用

医疗 γ 刀、后装治疗仪、 ^{60}Co 治疗机、各种放射源驱动的CT、工业用核仪器仪表等需要高比活度、结构精细的放射源;如 ^{60}Co 、 ^{192}Ir 、 ^{75}Se 等源,目前,国内产品远远不能满足需要^[14-15],亟需重点开发,尤其是 ^{75}Se 源小管径金属管道无损检测仪,该仪器在国外是重点开发和生产的产品。国内已有含 ^{75}Se 源的无损检测仪,但与国外相比,在成像质量的清晰度和定位准确性方面还存在很大的差距。

在以上高品质放射源的基础上,研发各种在线检测仪、反恐检测仪、探伤机等核仪器仪表,以提高灵敏度、精确度,实现目标物快速、准确地检测和检出,从而提高生产效率、确保生命及财产安全。例如,聚合塔、反应釜、容器罐等日常监测,利用 γ 射线穿透物质后强度变化与密度、厚度有关,配合软件编程和数据库,借助计算机进行解谱,可获得容器内壁结构和内部物质的各种信息,及时掌握容器壁受到腐蚀、裂纹、内部物质结块等影响安全和产品质量的缺陷,提供故障处置的准确信息,显著提高生产效率、保证设备安

全和产品质量。 ^{75}Se 源探伤机用于小管径的管道探伤比 ^{60}Co 、 ^{192}Ir 类探伤机具有更高的灵敏度和效率。

3.4 不断完善法规,促进放射源及其应用的良性发展

放射源及其应用确实是影响公众辐射安全的主要因素之一,对其严格管理是确保人民健康和安全的行之有效方法,但是,在制定政策和法规时除考虑“管住”外,还要考虑推动这个产业的发展,做到既管得住,又能促进产业的发展。与此同时,业界也要做到守法、适应法规的要求,及时将具体运行过程中的问题反馈给管理部门,不断完善法规,促进放射源及其应用的良性发展。

4 结束语

目前,我国放射源制备技术的发展和主要应用主要受放射性同位素原材料短缺、新技术对放射源的取代、公众对放射性的恐惧、政府法规的管制过严等因素的影响,同时也受企业对成本/效益考虑的影响。因此要推动我国放射源制备技术及应用的发展,就需要各个相关方的努力,尤其是拓展放射源的应用领域,更好地为国防、科学研究、医疗卫生等服务,为推进我国工业自动化、节能减排、生产效率提高做出应有的贡献。

参考文献:

- [1] 肖伦主编.放射性同位素技术[M].第2版.北京:原子能出版社,2005:153-191.
- [2] FLICKER H, LOFERSKI JJ, ELLEMAN TS. Construction of a promethium-147 atomic battery [J]. IEEE Transactions on Electron Devices, 1964, 2: 2-8.
- [3] 蔡善钰.电沉积法制备镅、钷和镥的 α 源[J].同位素, 2000, 13(3): 170-176.
- [4] ZELEFSKY MJ. Postimplantation dosimetric analysis of permanent transperineal prostate implantation: improved dose distributions with an intraoperative computer-optimized conformal planning technique[J]. Int J Radiat Oncol Biol Phys, 2000, 48: 601-608.
- [5] 蔡善钰,周正和. ^{85}Kr 气体放射源的密封技术[J].同位素, 1999, 12(2): 85-89.
- [6] TAM LA, TRAUTHEN BA. Thin film radiation source. US, 6287249B1[P]. 2001-09-11.
- [7] ALBERT CHAN, OELSNER SM, SIMPSON TJ. Radioactively coated device. US, 6793798B2 [P]. 2004-09-11.

- [8] ROGER GOOD. Endocurietherapy. US, 6666811B1 [P]. 2003-10-23.
- [9] 陈宝流,张培信,高翔,等. γ 射线扫描技术在石油化工生产中的应用[J]. 同位素, 2005, 18(1-2): 98-101.
- [10] 陈殿华. 核技术应用的产业化发展[J]. 国防科技工业, 2004, 9: 27-29.
- [11] 王乃彦. 核技术的应用及产业化前景广阔[J]. 中国核工业, 2003, 48(6): 22-24.
- [12] RIVARD MJ. Dosimetry for californium-252(²⁵²Cf) neutron-emitting brachytherapy sources and encapsulation storage, and clinical delivery thereof. US, 7118524B2[P]. 2006-10-10.
- [13] RINEHART GH. Design characteristics and fabrication of radioisotope heat sources for space missions[J]. Progress of Nuclear Energy, 2001, 39(3-4): 305-319.
- [14] 林书生,徐生东. 用⁷⁵Se γ 射线透照小管径对接焊接接头[J]. 无损探伤, 2008, 32(1): 34-35.
- [15] 汲长松. 我国非动力核技术工业应用仪器的发展过程与趋势[J]. 同位素, 2005, 18(1-2): 123-125.

《同位素》来稿要求和注意事项

(1) 登录本刊网站 <http://www.tws.org.cn> 在线投稿,并在网站首页下载《保密审查证明》和《版权转让协议》两个文件,签字盖章后通过邮局邮递给《同位素》编辑部(通信地址:北京 275 信箱 65 分箱《同位素》编辑部,邮编:102413)。按有关规定,编辑部没有收到这 2 份文件,所收稿件不能进入送外审程序。

(2) 本刊收稿后系统会自动给作者发送《收稿回执》,因此作者在线投稿时要保证邮箱的准确。根据《著作权法》并结合本刊实际情况,作者在收到收稿回执后 4 个月内未接到稿件处理通知者(个别有约定者除外),即可改投其他刊物。退修稿件一般超过 4 个月不修回者,本刊即作退稿处理。

(3) 来稿要求论点明确,文字简练,数据可靠,研究报告不超过 6 000 字,综述约 8 000 字(包括图表)。

(4) 来稿均须有中英文摘要及关键词,英文摘要前须有英文题目、作者姓名(中国作者用汉语拼音)、作者单位(正式对外名称)及邮编。获得基金资助产出的文章,须以第一页页下以页下注的形式注明基金项目的名称和编号。第一作者的作者简介也应注于第一页页下,格式:作者姓名(出生年~),性别(民族),籍贯,职称(或学位),从事专业。联系人非第一作者时,请注明联系人,并请写明联系方式。

(5) 文后参考文献请选择主要的著录,文献序号以其在文中引用的先后排列。具体格式请从本刊网站下载。

(6) 来稿应文责自负,但依照《著作权法》,本刊可以对来稿作文字修改或删节,凡有涉及原意的较大修改,则提请作者考虑。对不宜刊出的稿件,本刊会发退稿通知,恕不退还原稿,请自留底稿。来稿一经发表,将按有关规定向作者支付报酬,并赠送当期杂志 3 册。

(7) 本刊刊用的所有稿件将由编辑部与有关网络出版商协商进行网络出版。本刊所付稿酬为一次性稿酬,包含网络出版服务报酬,不再另付。凡不同意纳入者,请在投稿时声明,本刊将另行处理。