

## Выделение некоторых радиоактивных изотопов из циклотронных мишеней\*

Ю. Г. СЕВАСТЬЯНОВ, А. С. БЕЗМАТЕРНЫХ

*Физико-энергетический институт,  
Обнинск*

В докладе приведены методы выделения радиоактивных изотопов  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{73,74}\text{As}$  и  $^{26}\text{Al}$  из мишеней, облученных на циклотроне. Указанные методы предназначены для выделения изотопов из промышленных мишеней, весом до 100 грамм.

Выделение радиоактивных изотопов без носителя из облученных на циклотроне высокопроизводительных промышленных мишеней связано с рядом особенностей:

1. Вес промышленной мишени составляет десятки грамм и использование общепринятых методов разделения при таком содержании макрокомпонента, как правило, оказывается весьма трудоемким и продолжительным во времени.

2. В некоторых случаях из-за технологических соображений материал мишени представляет собой сплав нескольких элементов, что вносит дополнительные трудности в процесс переработки облученных мишеней.

Указанные обстоятельства приводят к необходимости разработки новых и усовершенствования старых методов выделения радиоактивных изотопов из циклотронных мишеней.

В настоящем сообщении приводятся некоторые методики выделения циклотронных изотопов, используемые в радиохимической лаборатории циклотрона Физико-энергетического института.

### *Выделение радиоактивного изотопа $^{22}\text{Na}$*

Радиоактивный изотоп  $^{22}\text{Na}$  получают при облучении магниевой мишени дейтонами, ускоренными на циклотроне, в результате ядерной реакции  $^{24}\text{Mg}(\text{d}, \alpha)^{22}\text{Na}$ .

В настоящей работе использовалась вращающаяся мишень с головкой в форме полусфера, изготовленной из сплава МА8. Основными компонентами сплава являются: Mg 97—98 %, Mn 1,5—2,5 %, Al 0,3 %, Ce 0,3 %, Zn 0,3 %. Площадь облучения  $\sim 70 \text{ см}^2$ . Растворение облученных мишеней показало, что для количественного снятия активности  $^{22}\text{Na}$  необходимо практически полное растворение мишени (50—70 г растворенного магния). Использование общепринятой [1, 2] ионообменной методики отделения  $^{22}\text{Na}$  от магния при таком содержании последнего приводит к значительным объемам элюирующих растворов (десятки литров) и большой продолжительности опыта. Попытки удаления основной массы магния осаждением его в виде  $\text{Mg}(\text{OH})_2$  [3] или  $(\text{NH}_4)_2\text{Mg}(\text{CO}_3)_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  [4] не дали положительных результатов.

\* Доклад на Конференции по радиохимии в г. Братислава, ЧССР, 6.—10. сентября 1966 г.

Как показали экспериментальные данные, полнота осаждения магния в виде  $Mg(OH)_2$  недостаточна; отмыка  $^{22}Na$  от осадка  $(NH_4)_2Mg(CO_3)_2 \cdot 4H_2O$  требует больших объемов промывных растворов и последующая доочистка  $^{22}Na$  от магния осложняется вследствие большого содержания солей аммония. Более того, наличие в растворе значительного количества  $Mn^{2+}$  ухудшает осаждение  $Mg(OH)_2$  или  $(NH_4)_2Mg(CO_3)_2 \cdot 4H_2O$ .

Нами был разработан метод сброса основного количества магния (94—97 %) осаждением последнего в виде сульфата магния из водно-ацетонных растворов.

В законченном варианте методика выделения  $^{22}Na$  без носителя из магниевой мишени заключалась в следующем.

Магниевая мишень растворялась в разбавленной серной кислоте. Кислота заливалась постепенно и контролировалась убыль активности мишени. Раствор (объемом 500—700 мл, с концентрацией магния 60—75 мг/мл) помещался в стеклянный аппарат, снабженный механической мешалкой и впаянным в дно фильтром Шотта № 1.

В аппарат заливалась ~ 900 мл ацетона и выпавшая пульпа осадка  $MgSO_4$  перемешивалась в течение 15—20 минут. Осадок сульфата магния отфильтровывался, растворялся в минимальном объеме (~ 400 мл) горячей воды и операция осаждения повторялась. Объединенные первый и второй водно-ацетонные фильтраты (2300—2400 мл) пропускались через ионообменную колонку со смолой Дауэкс 50X8 (100—200 меш), диаметром 1,5 см, высотой 50 см со скоростью 2—2,5 мл/мин. Десорбция  $^{22}Na$  осуществлялась 0,1-н HCl со скоростью 1,5—2,0 мл/мин. в объеме 500—600 мл. Элюент, содержащий  $^{22}Na$ , осторожно упаривался в кварцевой чашке на водяной бане и обрабатывался концентрированной  $HNO_3$  для удаления органических примесей. Избыток азотной кислоты удалялся многократным упариванием с водой; полученный слабо-кислый раствор (рН 2) являлся конечным продуктом. Концентрация активности  $^{22}Na$  составляла 0,3 мкг/мл; содержание магния ≤ 1 мкг/мл; радиохимическая чистота больше 99 %; выход 95—97 %.

В процессе получения  $^{22}Na$  при облучении сплава МА8 дейтонами имеет место образование радиоактивного изотопа  $^{26}Al$  по реакциям  $^{25}Mg(d, n)^{26}Al$ ,  $^{26}Mg(d, 2n)^{26}Al$ . Для выделения  $^{26}Al$  из сбросных магниевых растворов нами использовалась методика, которая включала следующие этапы:

1. Осаждение гидроокиси алюминия аммиаком.
2. Получение растворимых алюминатов при добавлении 10 % NaOH с введением обратных носителей  $Fe^{3+}$ ,  $La^{3+}$ ,  $Y^{3+}$  (по 5 мг каждого).
3. Очистка на анионите Дауэкс-1X8 при пропускании через смолу 8-н соляно-кислого раствора с введенными в него обратными носителями  $Co^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  и  $Zn^{2+}$  (по 5 мг каждого).
4. Вытеснительная хроматография на катионите Дауэкс-50X8 при десорбции соляной кислотой различной концентрации (0,5; 1,0; 2,0-н). Фракция алюминия собиралась при вымывании 2,0-н HCl. На всех ступенях очистки проводился анализ сбросных растворов на содержание алюминия колориметрическим методом с помощью алюминона. Потери  $^{26}Al$  при выделении составили ~ 25—30 %. Коэффициент очистки от  $^{22}Na$  был равен не менее  $10^8$ .

### *Выделение радиоактивного изотопа $^{73,74}As$*

Радиоактивные изотопы  $^{73,74}As$  получают при облучении германия дейтонами, ускоренными на циклотроне, в результате ядерной реакции  $^{72,73}Ge(d, n)^{73,74}As$ . В настоящей работе использовалась высокопроизводительная промышленная мишень, изготовленная из медно-германиевого сплава (вес мишени ~ 25 г).

Общепринятые дистилляционные [5] или ионообменные [6] методы отделения  $^{73,74}\text{As}$  от Ge трудоемки в исполнении, продолжительны во времени, сопряжены с возможностью потерь летучего  $\text{AsCl}_3$ , требуют больших загрузок по ионообменной смоле. Более того, они не учитывают наличия в растворе большого количества меди и радиоактивного  $^{65}\text{Zn}$ .

Нами была разработана методика выделения радиоактивных изотопов мышьяка-73,74 из промышленной мишени. В основу метода положено явление соосаждения мышьяка с гидроокисью железа. При контролируемом рН соосаждение германия незначительно, а последующая очистка радиоактивного мышьяка от носителя железа с помощью анионообменной хроматографии одновременно приводит к полной доочистке от захваченного германия и  $^{65}\text{Zn}$ .

В процессе разработки методики были изучены следующие вопросы: нахождение оптимальных условий для растворения медно-германиевого сплава; определение потерь германия за счет улетучивания  $\text{GeCl}_4$  при растворении сплава; зависимость величины соосаждения радиоактивного мышьяка на гидроокиси железа от рН осаждения, количества носителя и концентрации раствора по сплаву.

Проведенные эксперименты позволили разработать простую в исполнении и непрерывную во времени методику выделения радиоактивного мышьяка из облученного дейтонами медно-германиевого сплава, которая в законченном варианте состояла в следующем.

Облученный медно-германиевый сплав ~20 г растворялся при нагревании в 250 мл царской водки. По окончании растворения раствор отфильтровывался через фильтр Шотта № 2 в калиброванную ёмкость и разбавлялся дистиллированной водой до концентрации ~40—50 мг/мл.

Вводилось 40 мг носителя железа в виде  $\text{FeCl}_3$  и проводилось осаждение гидроокиси железа аммиаком при рН 3,5—4,0. После получасового выстаивания на водяной бане осадок гидроокиси отфильтровывался через стеклянный фильтр № 4, промывался ~50 мл 2 %  $\text{NH}_4\text{OH}$  и растворялся на фильтре 50 мл 7-н HCl с добавлением 1—2 мл  $\text{H}_2\text{O}_2$ . Полученный раствор пропускался через ионообменную колонку со смолой Дауэкс 1Х8 (100—200 mesh) диаметром 1,2 см, высотой слоя смолы 40 см, со скоростью ~1 мл/мин с последующей промывкой 7-н HCl. Мышьянк вымывался в пяти — семи свободных объемах колонки (~120—150 мл); раствор помещался в кварцевую чашку и избыток соляной кислоты удалялся многократным упариванием с водой на водяной бане.

Полученный слабокислый раствор (рН 3,0) являлся конечным продуктом. Концентрация активного мышьяка 73,74 составляла 0,3 мк/мл, радиохимическая чистота >99 %, выход ~95 %.

## ODDELOVANIE NIEKTORÝCH RÁDIOAKTÍVNYCH IZOTOPOV Z CYKLOTRÓNOVÝCH TERČÍKOV

J. G. Sevastjanov, A. S. Bezmaternych

Fyzikálnoenergetický ústav,  
Obninsk

V práci sa uvádzajú nové metódy separácie beznosičových rádioaktívnych preparátov z veľkého množstva cyklotrónového terčového materiálu. Vypracovali sa metódy na izoláciu beznosičového sodíka-22, hliníka-26 a arzénu-73 a 74.

$^{22}\text{Na}$  sa získaval ožarovaním horčíkového terčíka (zliatina MA8) deuterónmi. Horčík po aktivácii sa odstraňoval zrážaním v podobe síranu horečnatého z vodno-acetónového

prostredia.  $^{22}\text{Na}$  sa zachytil na katekovej kolóne, z ktorej sa potom desorboval účinkom 0,1 N-HCl. Pri aktivácii vznikajúci  $^{26}\text{Al}$  sa oddeloval zrážaním amoniakom v podobe hydroxidu hlinitého, premenou na rozpustné hlinitany pomocou NaOH za použitia spätných nosičov, čistením na vymieňači aniónov, sorpciou na vymieňači katiónov a nasledujúcou desorpciou pomocou 2 N-HCl.

Rádioizotopy  $^{73,74}\text{As}$  sa získali ožarovaním germánia (zliatina Cu—Ge) deuterónmi a ich spolužrážaním s hydroxidom železitým pri pH 3,5 — 4,0. Oddelenie od železa a čistenie od germánia a  $^{65}\text{Zn}$  sa uskutočnilo pomocou vymieňačov aniónov.

Uvedené metódy sú určené na separáciu rádioizotopov z priemyslových terčíkov o váhe do 100 g.

### SEPARATION OF SOME RADIOACTIVE ISOTOPES FROM THE CYCLOTRON TARGETS

J. G. Sevastjanov, A. S. Bezmaternych

Physico-Energetic Institute,  
Obninsk

New methods for separation of carrier-free radioactive preparations from the bulk of the cyclotron target material are reported. Methods for isolation of carrier-free sodium-22, aluminium-26 and arsenic-73 and 74 were developed.

$^{22}\text{Na}$  was obtained in such a way that the magnesium target (alloy MA8) was irradiated with deuterons. Magnesium was activated and then it was precipitated to form magnesium sulphate; afterwards it was removed from the water-acetone solution.  $^{22}\text{Na}$  was then retained on the cation exchanger from which it was desorbed with 0,1 N-HCl.  $^{26}\text{Al}$  which was formed in the course of the activation was separated in the following way: with ammonia it was precipitated as aluminium hydroxide, this was transformed to soluble aluminate by means of NaOH; this was purified on anex, then it was sorbed on catex and with 2 N-HCl it was desorbed.

Radioisotopes  $^{73,74}\text{As}$  were prepared by irradiating germanium (Cu—Ge alloy) with deuterons and by their coprecipitation with iron hydroxide at pH 3.5 — 4.0. Separation from the iron and purification from germanium and  $^{65}\text{Zn}$  was made by means of anion exchangers.

The above methods are suitable for separation of radioisotopes from industrial targets up to 100 g.

Preložila V. Šašková

### ЛИТЕРАТУРА

1. Linnenbom V., *J. Chem. Phys.* **20**, 1637 (1952).
2. Cerrai E., Gadda F., *J. Inorg. Nucl. Chem.* **16**, 356 (1960).
3. Gruverman I., Kruger P., *Intern. J. Appl. Rad. Isotopes* **5**, 21 (1959).
4. Irvine I., Clarke K., *J. Chem. Phys.* **16**, 686 (1948).
5. Irvine I. W., Jr., *J. Phys. Chem.* **46**, 810 (1942).
6. Schindewolf U., Irvine I. W., Jr., *Anal. Chem.* **30**, 906 (1958).

Адрес авторов:

Ю. Г. Севастьянов, А. С. Безматерных, СССР, г. Обнинск, Калужская область,  
Физико-энергетический институт.