

С 4138  
3-177

Радиожизнь, 1966, т. 8,  
№ 5, с. 576-584.

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

2346



Н.Г. Зайцева, Ким Хон Сил, В.А. Халкин

ХРОМАТОГРАФИЧЕСКИЙ МЕТОД ПОЛУЧЕНИЯ  
ПРЕПАРАТОВ РАДИОЙОДА БЕЗ НОСИТЕЛЯ  
С ВЫСОКОЙ УДЕЛЬНОЙ (ОБЪЕМНОЙ)  
РАДИОАКТИВНОСТЬЮ

АБОРТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

1965

3612/2 48.

Н.Г. Зайцева, Ким Хон Сил, В.А. Халкин

ХРОМАТОГРАФИЧЕСКИЙ МЕТОД ПОЛУЧЕНИЯ  
ПРЕПАРАТОВ РАДИОЙОДА БЕЗ НОСИТЕЛЯ  
С ВЫСОКОЙ УДЕЛЬНОЙ (ОБЪЕМНОЙ)  
РАДИОАКТИВНОСТЬЮ

Направлено в журнал "Радиохимия"

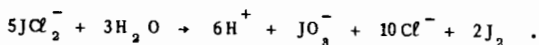


Изучение спектров конверсионных электронов радиоактивных нейтронодефицитных изотопов йода – интересная задача для ядерной спектроскопии.

Само по себе получение радиохимически чистых препаратов йода без носителя не представляет трудности. Этому вопросу посвящено много работ, например /1-6/. Но приготовление препарата радиойода для магнитной бета-спектроскопии осложняется рядом требований. Во-первых, конечный объем препарата, предназначенного для изготовления источников, должен быть минимальным (порядка 0,1–0,3 мл). Во-вторых, раствор не должен содержать солей, которые могут образовывать после высушивания или электроосаждения слой, ухудшающий разрешение спектра конверсионных электронов. В-третьих, методика должна быть достаточно быстрой, чтобы обеспечить изучение изотопов йода с периодом полураспада 1–2 часа. И, наконец, обязательным является дистанционное проведение процесса выделения йода из-за высокой радиоактивности облученной мишени, достигающей нескольких сотен мг-эквивалентов радия.

Анализ опубликованных материалов привел нас к заключению, что нельзя разработать методику, удовлетворяющую поставленным требованиям, если взять за основу одно из ранее выполненных исследований. Следовательно, были необходимы поиски новых методов получения радиойода, основанных на еще не использовавшихся свойствах элемента.

Хорошо известно /7/, что при окислении йодида или элементарного йода в солянокислом растворе большим избытком хлора образуется тетрахлорйодная кислота  $\text{HJCl}_4$ . Эта кислота является продуктом присоединения молекулы хлора к дихлорйодной кислоте и при малых концентрациях хлора в растворе разлагается:  $\text{HJCl}_4 \rightarrow \text{HJCl}_2 + \text{Cl}_2$ . Комплексный дихлорйодный анион устойчив в растворе при концентрации  $\text{HCl} > 0,5\text{M}$ ,  $K = [\text{JCl}_2^-] \cdot [\text{Cl}^-] / [\text{JCl}_4^-] = 6 \cdot 10^{-3}$  /8/. С уменьшением содержания  $\text{HCl}$ , даже в растворах 1 – 5 M  $\text{HCl}$   $\text{O}_4$ , интенсивно протекает реакция гидролиза:



Мы предположили, что тетрахлорйодная кислота в средах, обеспечивающих ее устойчивость, например, в концентрированных растворах соляной кислоты, насыщенных хлором, может проявлять свойства, подобные свойствам комплексных металлогалогенных

кислот типа  $\text{HMeCl}_4$ . Интересной особенностью этих кислот является абсорбция на монофункциональных сульфокатионитах типа Дауекс 50 и КУ-2 из 6-8 М растворов  $\text{HCl}$  /9,10/.

Абсорбция комплексных хлоридных анионов на сульфокатионитах ранее была успешно использована в нашей лаборатории при разработке методов получения концентрированных препаратов астатина, тяжелого химического аналога йода и радиоактивных изотопов золота /11,12/. Это свойство было положено нами в основу решения задачи получения концентрированных препаратов радиоактивных изотопов йода.

Механизм абсорбции сульфокатионами анионов типа  $\text{MeCl}_4^-$  еще не ясен. Имеющиеся экспериментальные результаты не противоречат схематическим представлениям о том, что в растворах хлористоводородной кислоты или ее солей атомы кислорода нейтральных сульфогрупп проявляют основные свойства и, присоединяя протон или катион металла, придают функциональной группе положительный заряд /12/. В результате такой перезарядки и становится возможной абсорбция анионов. Коэффициенты распределения анионов при абсорбции из растворов хлоридов щелочных металлов, при прочих равных условиях, значительно выше, чем из растворов кислоты. Это, видимо, связано с тем, что нейтральные молекулы комплексных кислот сульфокатионитом не абсорбируются, а диссоциация

$\text{HMeCl}_4$  в значительной мере подавляется при высоких концентрациях  $\text{H}^+$ . Например, константа диссоциации  $\text{H AuCl}_4 = 0,1$  /13/.

Изучая абсорбцию тетрахлорйодного аниона на сульфокатионитах, мы стремились не только выбрать оптимальные условия для решения прикладной задачи, но и получить новые экспериментальные факты, которые могут быть полезными при объяснении механизма абсорбции анионов сульфокатионитами.

#### Экспериментальная часть

Исследования в основном были выполнены с поставляемым конторой "Изотоп" йодом-131 без носителя. Полученные препараты использовались для приготовления исходных растворов йода-131 в  $\text{HCl}$ ,  $\text{NaCl}$ ,  $\text{LiCl}$ , насыщенных хлором.

Абсорбция тетрахлорйодной кислоты изучалась на монофункциональных сульфокатионитах Дауекс 50 x 8 и x 12 со сферическими зернами диаметром 60 мкм и КУ-2 x 2, x 6 и x 16 с частицами неправильной формы размером порядка 60 мкм. Чтобы уменьшить вероятность йодирования смолы и окислить примеси органических восстановителей, катиониты тщательно промывались 8М  $\text{HCl}$ , насыщенной хлором. После такой обработки, в соответствии с имеющимися в печати данными /14/, несколько уменьшалась общая обменная емкость катионитов, но емкость сильноокислотных функциональных групп оставалась прежней. После обработки солянокислым раствором хлора смола промывалась хлорной водой, бидистиллятом и высушивалась при 60°C.

Коэффициенты распределения радиоiodа между смолой и раствором определялись в статических условиях. Смола (50 мг) и раствор (3 мл) перемешивались в пробирках с притертыми пробками в течение двух часов, что было достаточно для достижения равновесных условий. Все определения выполнены при комнатной температуре. Чтобы исключить отрицательное влияние железа, которое может находиться в реактивах и воде, на абсорбцию  $\text{HfCl}_4$ , все реактивы готовились на бидистилляте;  $\text{NaCl}$  и  $\text{LiCl}$  были квалификации "хя", соляная кислота перегонялась.

Перед работой растворы насыщались хлором. Концентрация хлора в растворах определялась колориметрически <sup>15/</sup>.

Количество радиоiodа, абсорбированного катионитом и оставшегося в растворе, оценивалось по интенсивности  $\gamma$ -излучения, которое измерялось гейгеровским счетчиком типа МС-4.

Были определены зависимости коэффициентов распределения йода-131 без носителя от концентрации  $\text{HCl}$ ,  $\text{LiCl}$ ,  $\text{NaCl}$ ,  $\text{Cl}^-$  и  $\text{Cl}_2$  в растворе и от содержания дивинилбензола в смоле.

#### Результаты и их обсуждение

Предположение о том, что при определенных условиях хлоридные комплексы йода могут абсорбироваться монофункциональными сульфокатионитами, подтвердилось при экспериментальной проверке. Коэффициенты распределения ( $K_D$ ) радиоiodа между смолой и растворами при различных концентрациях  $\text{HCl}$ ,  $\text{LiCl}$  и  $\text{NaCl}$  приведены на рисунке 1. Как видно из рисунка, хлоридный комплекс йода лучше абсорбируется из растворов  $\text{LiCl}$ , чем из растворов  $\text{HCl}$ :

$$K_{D_{\max}} \text{ в } 5-8 \text{ M HCl} \approx 300, \text{ а } K_{D_{\max}} \text{ в } 8,5-11 \text{ LiCl} \approx 1000.$$

Абсорбция радиоiodа сульфокатионитами полностью обратима: при промывке смолы хлорной водой радиоiod переходит в раствор. Возможность использования такого простейшего элюента, как хлорная вода, по нашему мнению, наиболее важная с точки зрения прикладной радиохимии особенность метода абсорбции йода на сульфокатионитах.

Абсолютные значения коэффициентов распределения хлоридного комплекса йода между сульфокатионитом и растворами определяются не только составом раствора, но и степенью сшитости смолы (см. таблицу). Чем меньше содержание дивинилбензола в сульфокатионите, тем лучше абсорбируется хлоридный комплексный анион йода.

Чтобы выяснить, абсорбируется ли йод матрицей сульфокатионита, было изучено распределение  $^{131}\text{I}$  между  $8\text{M HCl}$  ( $\text{Cl}_2$ ) и несulfированным сополимером стирол-дивинилбензола. С целью увеличения поверхности контакта фаз сополимер подвергался

предварительной обработке, разруляющей его структуру<sup>/16/</sup>. В пределах экспериментальных ошибок мы не наблюдали абсорбцию тетрахлорйода несурьфированным сополимером стиролдивинилбензола. Это, по нашему мнению, является хорошим подтверждением предположения о том, что в процессе абсорбции хлоридных анионных комплексов йода участвуют функциональные группы катионита.

### Т а б л и ц а

Распределение микроколичеств радиойода между монофункциональными сульфокатионитами с различным содержанием дивинилбензола и раствором  $8 \text{ M HCl} (\text{Cl}_2)$ ;  $22 \pm 3^\circ \text{C}$ .

Катионит	% ДВБ	$K_D$	П р и м е ч а н и е
КУ-2	2	$1580 \pm 110$	Зерна смолы неправильной формы, средний видимый размер частиц порядка 60 мкм
КУ-2	8	$760 \pm 20$	
КУ-2	16	$258 \pm 8$	
Дауекс - 50	8	$310 \pm 20$	Сферические зерна диаметром 60 мкм
Дауекс - 50	12	$157 \pm 7$	

Изложенные выше результаты подобны тем, которые были получены ранее<sup>/12/</sup> при изучении абсорбции тетрахлораурата сульфокатионитами. Очевидно, что механизмы абсорбции  $\text{JCl}_4^-$  и  $\text{AuCl}_4^-$  одинаковы. Но общая картина абсорбции йода иная. Это вполне понятно: для аниона  $\text{AuCl}_4^-$ , константа нестойкости которого  $K = 5 \cdot 10^{-22/17}$ , стабильность абсорбируемого соединения не влияет на распределение, тогда как для  $\text{JCl}_4^-$  это один из основных факторов, в свою очередь зависящий от среды, концентрации хлорида и свободного хлора. На рис. 2 показано изменение коэффициентов распределения радиойода, который в исходном препарате был в форме  $\text{JCl}_4^-$ , в зависимости от концентрации  $\text{Cl}_2$  в  $8 \text{ M HCl}$ . Этот график наглядно иллюстрирует положение о том, что образование хорошо абсорбируемого соединения йода наиболее вероятно в растворах, содержащих большие концентрации свободного хлора.

Менее наглядна кривая зависимости абсорбции радиойода от концентрации  $\text{HCl}$  из растворов  $\text{HCl} + \text{HClO}_4$ , насыщенных хлором, при  $[\text{H}^+] = 8 \text{ M}$  (рис. 3). В  $5 \text{ M HCl} + 3 \text{ M HClO}_4$   $K_D$  в несколько раз меньше, чем в растворе  $5 \text{ M HCl}$ , хотя, если принимать во внимание только устойчивость абсорбируемого комплексного хлоридного аниона в растворе и концентрацию положительно заряженных центров абсорбции на смоле, такого эффекта нельзя было ожидать. Мы полагаем, что суть явления заключается в том, что анион  $\text{ClO}_4^-$  также может абсорбироваться сульфокатионитом, однако слабее иона  $\text{JCl}_4^-$ . Но благодаря высокой концентрации перхлората подавляется абсорбция  $\text{JCl}_4^-$ . Приведенная на рис. 3 кривая, видимо, отражает два процесса: образование абсорбируемого соединения йода и конкурирующую абсорбцию  $\text{ClO}_4^-$ .

## Метод хроматографического концентрирования радиоioda

Результаты, полученные при изучении абсорбции  $\text{I}^{131}\text{Cl}_4^-$  на сульфокатионитах в статических условиях, позволили нам разработать метод получения концентрированных препаратов радиоioda, основанный на использовании принципов колоночной хроматографии.

Насыщенный хлором 6–8 М по  $\text{HCl}$  раствор радиоioda фильтровался через колонку диаметром 2 мм со слоем сульфокатионита Дауекс 50 x 8 или КУ-2 x 6 высотой 80–100 мм ( $\approx 100$  мг) со скоростью 3–4 капли в минуту ( $\approx 0,1$  мл/мин). Iод практически полностью абсорбировался смолой. Элюирование радиоioda производилось бидистиллятом, насыщенным хлором. Iод количественно вымывался очень резким пиком в первых каплях элюента в объеме  $\approx 0,1$  мл (рис. 4). Содержание  $\text{HCl}$  в таком препарате радиоioda составляло 2–3% (0,5–0,8 М). Если исходные препараты Iода не содержат других кислот и микроколичеств различных хлоридов, то через колонки приведенных размеров без заметных потерь Iода можно фильтровать растворы объемом до 10 мл. Следовательно, концентрация радиоioda в конечном препарате может быть увеличена по сравнению с исходным почти на 2 порядка.

Увеличение рабочего объема хроматографической колонки на порядок (до 1 г смолы) не приводило к пропорциональному увеличению объема элюента, содержащего Iод: радиоiod вымывался в 0,15 – 0,2 мл.

На основе такого процесса хроматографического концентрирования нами были разработаны методы выделения радиохимически чистых препаратов Iода с высокой удельной (объемной) радиоактивностью из различных мишеней. Мы использовали окись  $\text{Te}$ , облученную тепловыми нейтронами на импульсном быстром реакторе (ИБР, ОИЯИ);  $\text{Te}$  мет., облученный дейтронами на циклотроне; окись  $\text{Sb}$ , облученную  $\alpha$ -частицами, и окись  $\text{La}$ , облученную протонами высоких энергий.

## Окись лантана, облученная протонами с энергией 630 Мэв

Для получения препаратов нейтрондефицитных изотопов Iода окись лантана, спрессованная в виде таблеток толщиной 1 мм и весом 1–1,5 г, облучалась внутренним пучком протонов на синхротронном реакторе Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ. После облучения, в основном в результате реакций расщепления типа ( $p, \text{Sp}_{\text{xn}}$ ), где вероятные значения  $0 \leq X \leq 20$ , образуются практически все известные изотопы Iода. Наибольший выход имеют нейтрондефицитные изотопы с  $A < 127$ .

Наряду с Iодом при облучении лантана образуются радиоактивные изотопы многих элементов, суммарная интенсивность излучения которых в десятки раз больше, чем у

йода, в результате чего радиоактивность препарата перед началом обработки была эквивалентна 100–500 мг радия.

Облученная окись лантана растворялась при слабом нагревании в 20–25 мл концентрированной  $\text{HCl}$ . Полученный раствор, 6M по  $\text{HCl}$ , разбавлялся водой (1:1), к нему добавлялись при энергичном перемешивании  $\text{SnCl}_2$  до концентрации  $\approx 0,01$  M и 20–30 мг серебра в виде разбавленного раствора  $\text{AgNO}_3$ . При выбранных нами условиях соосаждения  $\text{AgCl}$  захватывает 80–85% радиоioda. В растворе остаются вещество мишени и большинство радиоактивных продуктов ядерных реакций, в том числе и такие, которые вместе с йодом могут абсорбироваться на сульфокатионитах из концентрированных растворов соляной кислоты, например, барий и сурьма<sup>18/</sup>. Осадок хлористого серебра тщательно промывался 1M  $\text{HCl}$  и растворялся в 4 мл концентрированной  $\text{HCl}$  при перемешивании суспензией барботирующим хлором. Полученный раствор разбавлялся хлорной водой до 6–8 M  $\text{HCl}$ , отделялся от возможных следов нерастворившейся взвеси центрифугированием и фильтровался через хроматографическую колонку диаметром 2 мм со слоем сульфокатионита 120–140 мм ( $\approx 150$  мг). При объемной скорости проходящего раствора 0,15–0,2 мл/мин йод, по данным модельных опытов, полностью оставался на колонке. Колонка отмывалась от следов радиоактивных загрязнений и серебра 8M  $\text{HCl}$  ( $\text{Cl}_2$ ). Йод элюировался хлорной водой (рис. 5). В двух–трех каплях элюента ( $\approx 0,1$  мл) содержалось, с учетом распада, около 80% образовавшегося при облучении радиоioda. Время, необходимое для проведения такого выделения радиоioda из облученного La,  $\approx 2$  часа.

Использование двух относительно специфичных для йода процессов очистки (соосаждения с  $\text{AgCl}$  и абсорбции – десорбции на сульфокатионите) обеспечивало радиохимическую чистоту получившихся препаратов йода. Чистота препаратов оценивалась методами радиохимического анализа, а также по  $\gamma$ -спектрам и по периодам полураспада. Полученные результаты позволяют утверждать, что содержание радиоактивных загрязнений в выделенных из лантана препаратах йода, менее 1%. Более точную оценку из-за сложного изотопного состава радиоioda сделать было трудно.

Получение радиоioda в малых объемах раствора ( $\approx 0,1$  мл) позволяло готовить высококачественные источники излучения для ядерных магнитных спектрометров и спектрографов. В качестве материалов подложки использовались серебро и платина, на которых йод прочно удерживался в результате хемосорбции.

При изготовлении источников на серебре солянокислый раствор радиоioda высушивался при 50–60°C на тонкой полоске размером  $(0,7 \pm 0,1) \times 15$  мм<sup>2</sup>. В процессе сушки и последующей восьмичасовой выдержки препаратов в вакууме не наблюдалось заметных потерь радиоioda. Блестящая поверхность серебра после высушивания на ней солянокислого раствора слегка тускнела и темнела. Однако эти изменения су-



шественно не сказывались на спектрометрических качествах препарата: при измерении на бета-спектрометре с двойной фокусировкой конверсионных электронов  $^{131}\text{J}$  с энергией 251,15 кэв (линия К 284,31 кэв) было получено приборное разрешение, равное 0,23%.

✓ Для нанесения йода на платину был разработан электролитический метод. Процесс проводился в микроэлектролитической ячейке <sup>/19/</sup>. Катодом служила полоска платиновой жести  $(0,4 \pm 0,1) \times 15 \text{ мм}^2$ . Платина тщательно обезжиривалась, рабочая сторона катода обрабатывалась шлифовальной бумагой и промывалась бидистиллятом. Раствор радиоioda (0,08–0,07 мл) переносился в платиновую ванночку – анод электролитической ячейки и разбавлялся до 0,3–0,4 мл 1–2 М  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Процесс электролитического осаждения проводился при силе тока 3–4 ма. Количество адсорбированного на катоде радиоioda оставалось постоянным с увеличением силы тока, но было прямо пропорционально времени выделения. При длительности электролиза 40 минут выход был равен 70–75%. Поверхность платины после электролиза не имела видимых внешних изменений. Улетучивание радиоioda в вакууме не наблюдалось. Кроме того, мы пытались электролитически наносить йод на поверхность серебра и золота. В первом случае после электролиза получалась неудовлетворительная поверхность источника, а во втором – адсорбция радиоioda на катоде не наблюдалась.

#### Оксид сурьмы, облученный $\alpha$ -частицами с энергией 30 Мэв

Облучение сурьмы ядрами гелия обычно проводится для получения  $^{124}\text{J}$ ,  $^{125}\text{J}$  и  $^{126}\text{J}$  по реакциям ( $\alpha, xn$ ), где  $1 \leq x \leq 3$ . Радиоактивность мишени к моменту начала обработки в основном определялась этими изотопами. Оксид  $\text{Sb}$  растворялась в насыщенной хлором концентрированной  $\text{HCl}$ . Раствор для снижения концентрации соляной кислоты нагревался до кипения и разбавлялся до 3М  $\text{HCl}$ . Чтобы предотвратить гидролиз сурьмы, разбавление радиоактивного раствора проводилось 2М  $\text{HCl}$ . Дальнейшая процедура получения препарата радиоактивных изотопов йода такая же, как и при выделении радиоioda из облученной протонами окиси  $\text{La}$ .

#### Элементарный теллур, двуокись теллура и теллуровая кислота

Для получения  $^{131}\text{J}$  используются обычно теллур и его соединения, которые облучаются тепловыми нейтронами и иногда протонами и дейтронами. Большинство стандартных методов разделения йода и теллура основано на дистилляции элементарного йода из сернокислых растворов <sup>/20/</sup>. Предлагаемое нами хроматографическое разделение по сравнению с этими методами – более простой и быстрый метод. Так как теллур не аб-

сорбируется сульфокатионитами из концентрированных растворов соляной кислоты, разделение сводится к фильтрации раствора теллура и йода-131 через ионообменную колонку. При растворении теллура и его соединений в концентрированной соляной кислоте, через которую барботирует хлор, весь радиоiod получается в одном химическом состоянии, так как высшие валентные формы восстанавливаются хлорид-ионами, а низшие - окисляются хлором. Таким образом отпадает необходимость в окислительном цикле, обязательном при дистилляционном разделении.

Исходным сырьем для получения  $^{131}\text{J}$  в Советском Союзе служит  $\text{TeO}_2$ . Для обработки обычно берется около 10 г облученного материала. Такую же навеску использовали и мы в опытах по хроматографическому выделению йода из теллура.

Абсорбция микроколичеств йода монофункциональными сульфокатионитами уменьшается, если содержание теллура в солянокислых растворах больше 10 мг/мл (рис. 6). Но коэффициенты распределения остаются все-таки достаточно высокими для проведения разделений при концентрации 100-200 мг/мл теллура в  $8\text{M HCl}$  ( $\text{Cl}_2$ ). На рис. 7 приведена хроматограмма разделения модельной смеси теллура ( $\text{TeO}_2$ ) и  $^{131}\text{J}$  на колонке диаметром 6 мм и слоем смолы 250 мм (5 г Даукс 50x8, 60 мкм, свободный объем колонки 4 мл). Содержание теллура в растворе 135 мг/мл. Объемная скорость при фильтрации раствора через колонку 1,5-2 мл/мин. Колонка отмывалась от следов теллура 60 мл  $8\text{M HCl}$  ( $\text{Cl}_2$ ). Потери радиоiodа в процессе фильтрации и промывки не превышали 15%. Адсорбированный радиоiod вымывался  $\text{H}_2\text{O}(\text{Cl}_2)$ . В первых 0,2 мл элюента собиралось 80-85% йода от первоначально добавленного количества  $^{131}\text{J}$  к двуокиси теллура. Содержание теллура в этом препарате не более  $10^{-6}$  г.

Хроматографический метод использовался нами для получения  $^{131}\text{J}$  из 10 г  $\text{TeO}_2$ , облученной тепловыми нейтронами на импульсном быстром реакторе ОИЯИ. Радиоактивность выделенного препарата йода убывала в течение трех месяцев с периодом полураспада 8 дней. Гамма-спектр препарата не изменялся со временем и точно соответствовал справочным данным о  $\gamma$ -переходах, сопровождающих распад  $^{131}\text{J}$ . Эти результаты позволили сделать заключение о том, что радиохимическая чистота выделенного хроматографическим методом йода лучше чем 99,8%. Время, необходимое для изготовления препарата йода, обычно не превышало 6 часов. Сюда включается и время растворения 10 г  $\text{TeO}_2$  в концентрированной  $\text{HCl}$  при барботировании хлора через спусензию.

В одном из опытов мы использовали для получения  $^{131}\text{J}$  металлический теллур, облученный дейтронами с энергией 10 Мэв. Методика выделения ничем не отличалась от описанной выше. Радиохимическая чистота полученного радиоiodа была такая же, как и в случае  $\text{TeO}_2$ .

Как видно из приведенных в настоящей работе хроматограмм, характерной особенностью препаратов радиоiodа, полученных хроматографическим методом, является

их высокая удельная (объемная) радиоактивность. В наших опытах радиоактивность препаратов была порядка 100 мкюри/мл. Известно, что сульфокатиониты обладают высокой радиационной стойкостью <sup>21,22/</sup>. Аналитически ощутимые изменения в их свойствах появляются при дозе облучения  $10^8$  рад/г. При загрузке смолы йодом - 131 порядка кюри/г интегральная доза за два часа не будет превышать  $10^6$  рад/г. Следовательно, при таких загрузках сорбента радиационные эффекты не должны мешать процессу разделения и загрязнять препарат йода продуктами радиолитического разрушения смолы. Поэтому хроматографическим методом, в принципе, можно получить из облученного теллура или сурьмы препараты радиоioda с радиоактивностью 1-2 кюри/мл. Насколько можно судить по имеющимся в печати данным, другими методами нельзя приготовить столь быстро и просто аналогичные препараты. Мы полагаем, что концентрированные растворы радиоioda в химически активной форме будут особенно удобны для синтеза меченых йодорганических препаратов, которые сейчас в широком ассортименте выпускаются изотопной промышленностью.

### З а к л ю ч е н и е

Найдено ранее неизвестное свойство микроколичеств йода обратимо абсорбироваться в форме хлоридного комплекса  $\text{JCl}_2 - \text{Cl}_2$  на монофункциональных сульфокатионитах типа КУ-2 и Даукс 50 из насыщенных хлором концентрированных растворов  $\text{HCl}$  и  $\text{LiCl}$ .

Коэффициенты распределения в 5 - 8 М  $\text{HCl}(\text{Cl}_2) \approx 300$ , а в 9 - 11 М  $\text{LiCl}(\text{Cl}_2) \approx 1000$ .

На основе найденного свойства разработан хроматографический метод выделения без носителя нейтронодефицитных изотопов йода из окиси лантана, облученной протонами высоких энергий.

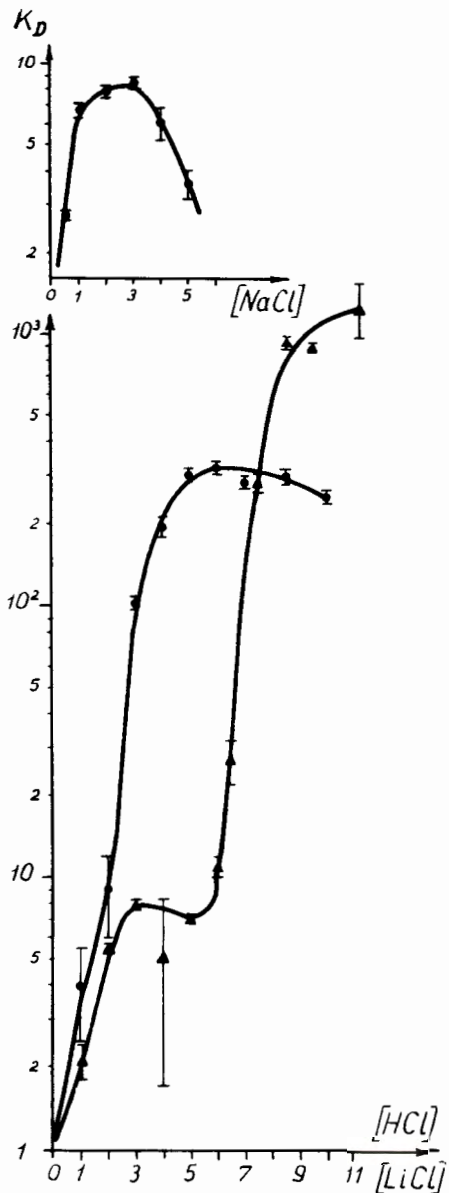
Полученные препараты радиоioda использовались для приготовления качественных источников, необходимых при исследованиях спектров конверсионных электронов. Для этой цели йодосодержащие растворы высушивались на серебряных подложках или йод электролитически осаждался на платиновом катоде из растворов  $\text{HCl} - \text{H}_2\text{SO}_4$ .

Хроматографический метод применим для выделения радиоизотопов йода из облученного тепловыми нейтронами теллура и из сурьмы, облученной альфа-частицами. Он позволяет получать препараты изотопов йода с радиоактивностью 1-2 кюри/мл. Радиохимическая чистота препаратов лучше 99,9%; содержание  $\text{HCl}$  2-3%.

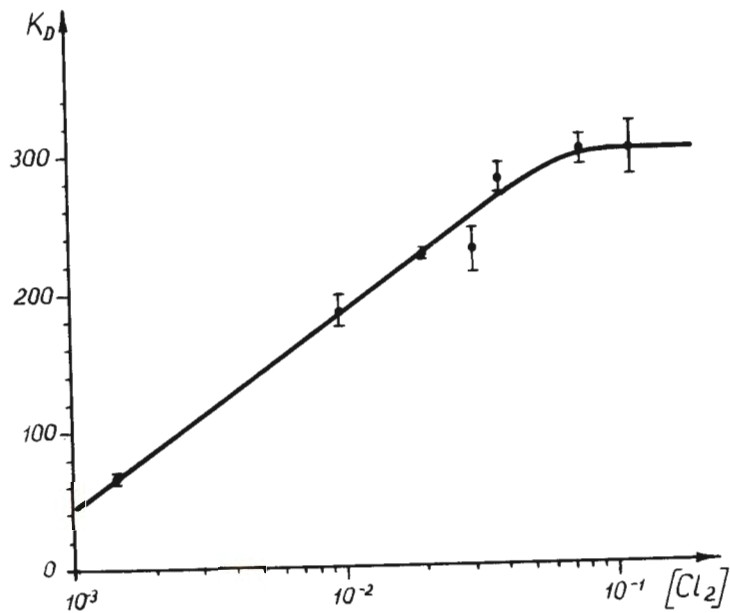
## Л и т е р а т у р а

1. L.G.Stang, W.P.Tucker. *Nucleonics*, 12, 8, 21 (1954).
2. Д.И. Рябчиков, А.Н. Ермаков, Л.С. Козырева. Сб. „Применение меченых атомов в аналитической химии”, 179. Из-во АН СССР, М., 1955 .
3. M.Inarida. *J.Chem. Soc. Japan*, 80, 4, 400(1959).
4. N. Getoff, W.Parker. *Nature*, 197, 278 (1963).
5. J.J.Gruverman. *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 7, 2, 345 (1964) .
6. H.Sorantin, H.Bildstein. *J.Inorg. Nucl. Chem.*, 27, 3, 521 (1965).
7. W.B.Person, H.Stommreich, G.R.Anderson, R.Froneris, J.N.Fordemwalt, *J.Chem. Phys.*, 35, 3, 908 (1961).
8. D.L.Cason, H.M.Neuman. *J.Am. Chem. Soc.*, 83, 8, 1822 (1961).
9. K.A.Kraus, F.Nelson, D.C.Michelson. *J.Am.Chem. Soc.*, 81, 13, 3204 (1959).
10. Ван Юн-юй, В.А. Халкин. Преприят ОИЯИ, Р-541, Дубна, 1960.
11. Ван Фу-цзюн, Ган Мэн-хуа, В.А. Халкин. *Радиохимия* 4 , 1 , 84 (1962).
12. Ван Фу-цзюн, Ю.В. Норсеев, В.А. Халкин, Чао Тао-нань. *Радиохимия*, 5 , 6, 661 (1963).
13. К.А. Краус, Ф. Нельсон. *Химия ядерного горючего*, 358. Госатомиздат, М, 1958.
14. W.I.Blaedel, E.D.Olsen. *Analyt. Chem.*, 33, 4, 531 (1961).
15. Д.Ф. Болл, У.Дж.Холланд. *Колориметрические (фотометрические) методы определения неметаллов*, 173. ИЛ, М., 1963 .
16. I.Z.Steinberg, H.A.Scheaga. *J.Am.Chem. Soc.*, 84, 15, 2890 (1962).
17. К.Б. Яцимирский, В.П. Васильев. *Константы нестойкости комплексных соединений*, 121. Изд. АН СССР, М.-Л., 1958.
18. F.Nelson, T.Murase, K.A.Kraus, *J.Chromat.*, 13, 2, 503 (1964).
19. А.Ф. Новгородов, В.Л. Кочетков, Н.А. Лебедев, В.А. Халкин. *Радиохимия*, 6 , 1, 73 (1963).
20. Л.С. Козырева-Александрова, Н.И. Темникова. *Радиоактивный изотоп йода-131*. Атомиздат, 1960.
21. K.A.Nater. *UNPUAE. Second International Conference. Geneva*, 29, 238 (1958).
22. L.L.Smith, H.J.Groh, *USAEC Report DP-549* (1961) (С.А., 55, 17173, 1961).

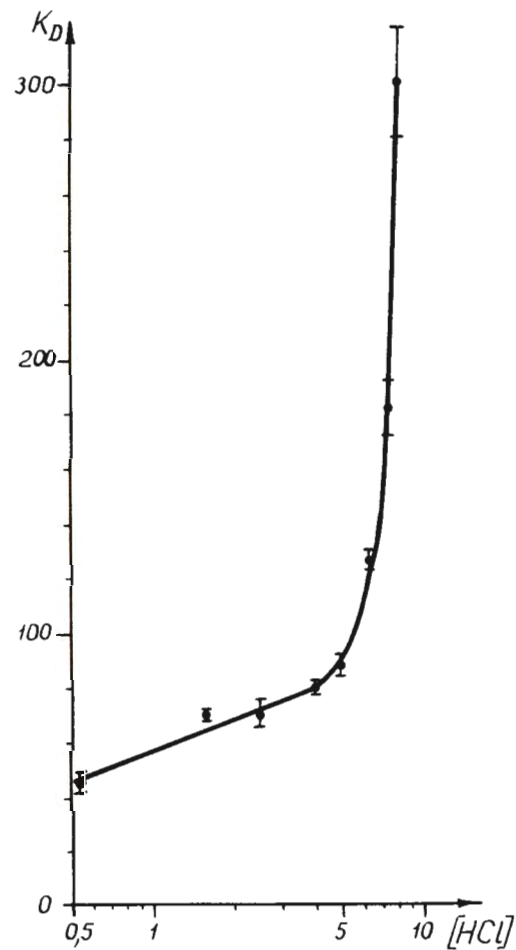
Рукопись поступила в издательский отдел  
3 сентября 1965 г.



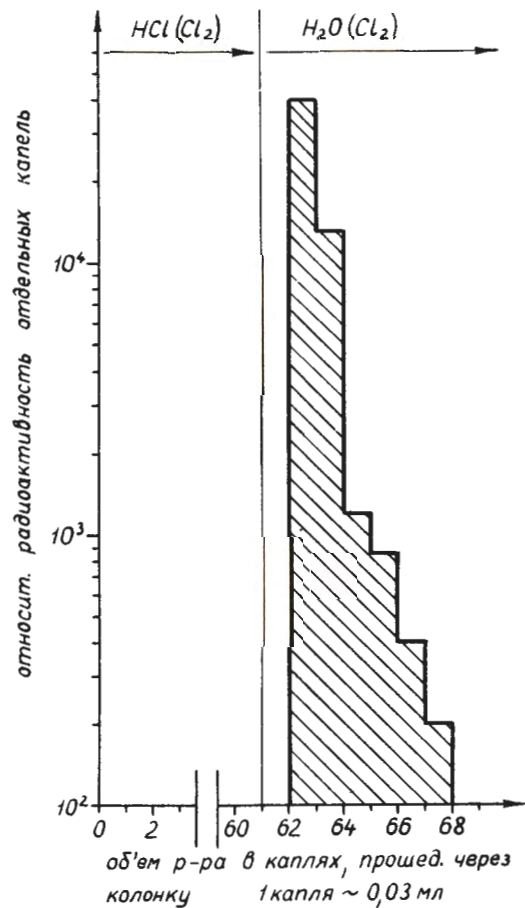
Р и с. 1. Распределение хлоридного комплекса йода между Дауекс 50x8 и растворами  $HCl(Cl_2)$ ,  $LiCl(Cl_2)$ ,  $NaCl(Cl_2)$  различной концентрации.



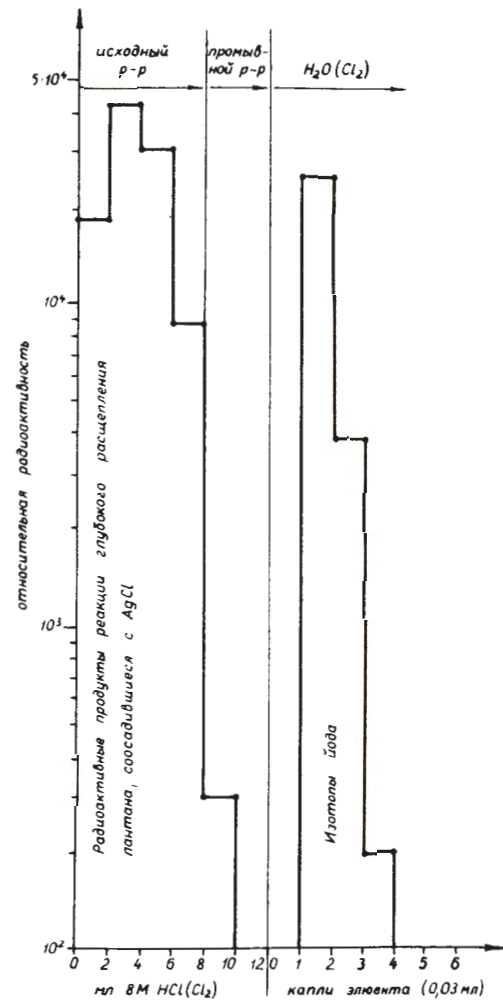
Р и с. 2. Изменение коэффициентов распределения йода между Дауекс 50x8 и 8M HCl в зависимости от концентрации  $Cl_2$ .



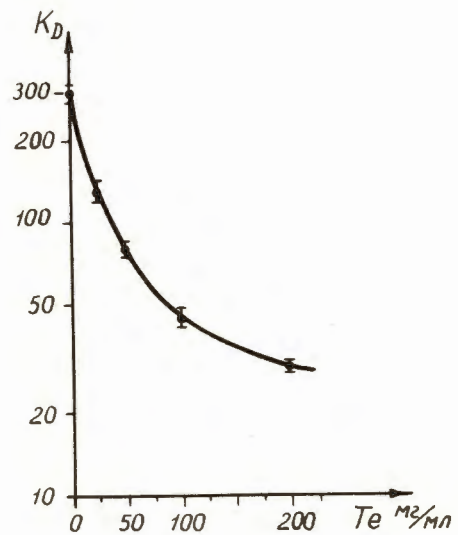
Р и с. 3. Зависимость абсорбции йода от концентрации HCl из 8M растворов  $HCl + HClO_4$  на Дауекс 50x8.



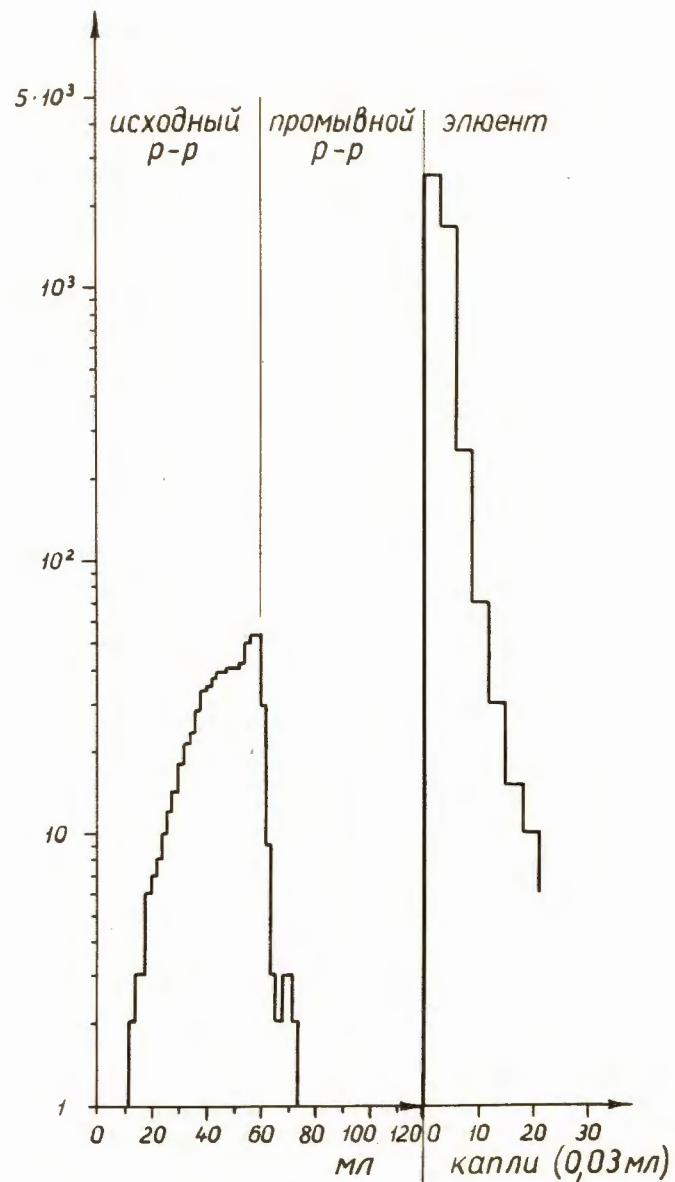
Р и с. 4. Хроматограмма элюирования радиойода из колонки, заполненной Дауекс 50 x 8, 60 мкм<sup>56</sup>,  $\phi = 2$  мм,  $l = 100$  мм.



Р и с. 5. Хроматограмма разделения на колонке радиойода и радиоактивных изотопов других элементов, соосадившихся с 40 мг  $\text{AgCl}$  из 3М  $\text{HCl}$  - 0,01М  $\text{SnCl}_2$ ;  $\phi = 2$  мм,  $l = 140$  мм, Дауекс 50 x 8, 60 мкм.



Р и с. 6. Изменение коэффициентов распределения  $\text{JCl}_2^- \cdot \text{Cl}_2$  между Дауекс 50 x 8 и 8M  $\text{HCl}(\text{Cl}_2)$  в зависимости от концентрации теллура.



Р и с. 7. Разделение модельной смеси 10 г  $\text{TeO} - ^{131}\text{J}$  на колонке  $\phi = 6$  мм,  $l = 250$  мм, Дауекс 50 x 8, 60 мкм. Исходный раствор 8M  $\text{HCl}(\text{Cl}_2) - 135$  мг/мл  $\text{Te} - ^{131}\text{J}$ , промывной раствор 8M  $\text{HCl}(\text{Cl}_2)$ , элюент  $\text{H}_2\text{O}(\text{Cl}_2)$ .