

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

99-282

P6-99-282

Д.В.Философов, Н.А.Лебедев, А.Ф.Новгородов,
Г.Д.Бончев, Г.Я.Стародуб

ПОЛУЧЕНИЕ, КОНЦЕНТРИРОВАНИЕ
И ГЛУБОКАЯ ОЧИСТКА
РАДИОПРЕПАРАТОВ In-111

Направлено в журнал «Applied Radiation and Isotopes»

1999

Получение, концентрирование и глубокая очистка
радиопрепаратов In-111

Описана новая методика выделения In-111 из серебряной мишени, облученной α -частицами с энергией 30 МэВ. Очистка в несколько этапов позволяет получить радиопрепараты, в которых на один атом In-111 приходится не более 10 атомов химически сходных металлов.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1999

Filossofov D.V. et al.

P6-99-282

Production, Concentration and Deep Purification
of In-111 Radiochemicals

A new method of isolation of In-111 from a 30 MeV α -particles bombarded Ag target is described. A multistep purification technique developed allows production of In-111 radiochemicals in which ratio In-111 vs others (chemically similar) metal atoms is less than 1:10.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

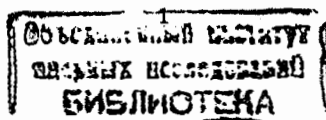
Введение

При решении ряда задач в ядерной физике, химии и ядерной медицине необходимы радиоактивные препараты с высокой удельной активностью. Например, для изготовления максимально интенсивных предельно тонких спектрометрических источников альфа- и бета- частиц методом вакуумного испарения или методом Лангмюра-Блуджетт (ЛБ), желательно иметь препарат, содержащий только исследуемый изотоп, распределенный в среде, которая не оказывает отрицательного влияния как на процесс приготовления источника, так и на результаты исследования. Аналогичные требования к удельной активности радиопрепаратов предъявляются при исследованиях гамма-гамма возмущенных угловых корреляций (ВУК) и электромиграции (ЭМ). Хотя на практике это не всегда достигается, современные методы радиохимии позволяют получать весьма чистые препараты радионуклидов.

По объему использования в радиофармацевтике In-111 ($T_{1/2} = 2.8$ дн.) входит в десятку наиболее употребляемых радионуклидов. В исследованиях ВУК In-111 играет еще большую роль. Его получают, в основном, двумя путями – из обогащенных изотопов кадмия (облучение протонами или дейтронами) или серебра (облучение альфа-частицами или ионами He-3). В последнем случае, хотя выход In-111 в ядерных реакциях значительно ниже, полностью исключается нежелательная примесь In-114m. Для радиохимического выделения In-111 использовались методы, включающие соосаждение с гидроокисью железа или кадмия [1], анионный обмен [2, 3], экстракцию [4, 5] и термохроматографию [6, 7]. Каждый из методов имеет свои сильные и слабые стороны. Мы пришли к выводу, что для получения In-111 с высокой степенью очистки от возможных загрязнений различных металлов необходимо применять разделение в несколько этапов.

Экспериментальная часть

Мишень, изготовленная из природного серебра, облучалась на ускорителе У-200 ОИЯИ альфа-частицами 25 – 30 МэВ, что приводило к активации поверхностного слоя на глубину не более 100 мкм. Мишень выдерживалась в течение двух суток с целью понижения активности In-109 ($T_{1/2} = 4.2$ ч) и In-110 ($T_{1/2} = 4.9$ ч). Активный слой мишени растворяли 3 – 5 мл концентрированной азотной кислоты, затем к раствору добавляли 3 мг $\text{La}(\text{NO}_3)_3$ и раствор аммиака до $\text{pH} \geq 8$. При этом In^* соосаждался с $\text{La}(\text{OH})_3$, а Ag и Cd-109 оставались в растворе. Отцентрифугированный осадок $\text{La}(\text{OH})_3\text{In}^*$ вновь растворяли в HNO_3 и осаждали аммиаком. Для более полного удаления Ag и Cd эту операцию повторяли 5 раз, затем осадок промывали 3 раза бидистиллированной водой. Так как процессы отделения осадка, его растворения и повторных соосаждений проводятся в одном сосуде, потери In-111 минимальны и обычно на этом этапе не превышают 5%. Для более высокой очистки и концентрирования применяли метод ионообменной хроматографии. Осадок $\text{La}(\text{OH})_3\text{In}^*$ растворяли в минимальном количестве HCl, чтобы концентрация H^+ была около 0,1M. Полученный раствор вносили в колонку ($\varnothing = 3$ мм, $h = 100$ мм, Dowex 50Wx8, 200 – 400 меш., в H^+ -форме). При этом $\text{La}^{3+}(\text{In}^*)$ адсорбируются в верхней части колонки. Затем колонку промывали растворами 0.1 M и 0.25M HCl в количестве по три свободных объема колонки. In-111 элюируется 0.5 M HCl в объеме около 0.5 мл. $\text{La}(\text{III})$, а также и возможные примеси Fe(III), Al(III), и щелочноземельные элементы остаются на колонке [8]. Этот раствор упаривается досуха, а остаток растворяется в минимальном количестве 0.1 M HCl. Раствор вносится в колонку меньшего размера, изготовленную из кварцевого стекла ($\varnothing = 1.25$ мм, $h = 30$ мм, Aminex A6, в H^+ -форме),



и проводится ее промывка, как указано выше. In-111 элюируется в двух каплях раствора 0.5 М HCl (объем около 50 мкл).

Активность препаратов In-111, а также их радиохимическая чистота на всех этапах выделения контролировалась гамма-спектрометром с Ge(Li)-детектором.

Результаты и обсуждение

Общая активность очищенного препарата составляла около 20 мКи. При упаривании этого раствора на тефлоновой подложке не наблюдается солевого осадка. Контрольные опыты с InCl_3 и FeCl_3 показывают, что солевой осадок начинает наблюдаться при весовом количестве солей около 100 нг. Так как 20 мКи In-111 соответствуют 2.6×10^{13} атомов и вес хлорида такого количества атомов In равен 10 нг, можно сделать вывод, что в исходном препарате In-111 на один атом In-111 приходится не более 10 атомов химически сходных элементов.

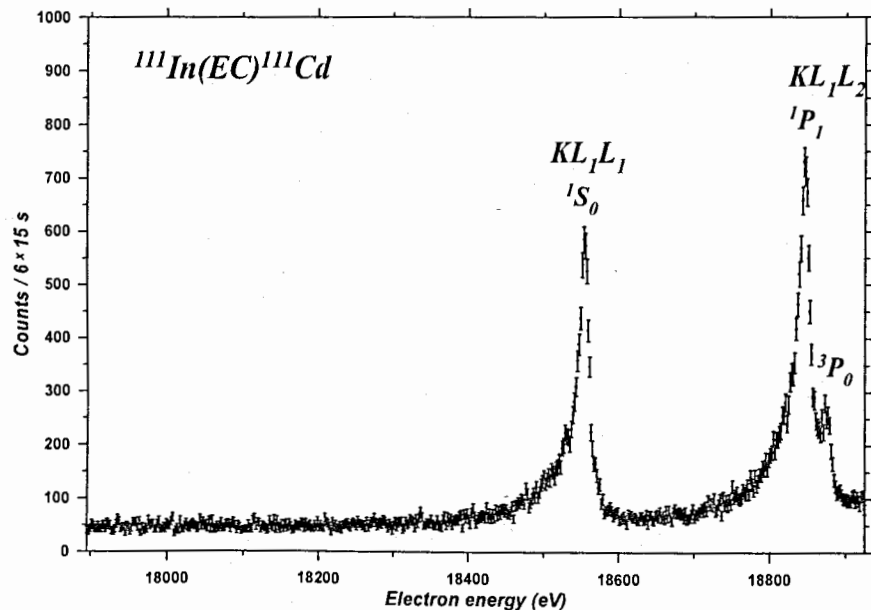


Рис. 1 Часть спектра оже-электронов Cd-111

Методом ЛБ был приготовлен источник In-111 активностью 2.5 мКи площадью 0.14 см^2 , который использовался для исследований оже-электронов Cd-111 на электростатическом бета-спектрометре. Часть полученного спектра представлена на рис. 1. Форма линий подтверждает, что In-111 находится в мономолекулярном слое соли жирной кислоты. Так как поверхностная емкость такого слоя составляет около 5×10^{14} одновалентных ионов на 1 см^2 , то отношение количества атомов In-111 к числу атомов химически сходных элементов в этом случае соответствует 1 к 7 [9].

Ряд проведенных методом ВУК [10] исследований поведения In-111 в водных растворах показывает, что возможно получение невозмущенных угловых корреляций гамма-каскада 171 – 245 кэВ дочернего Cd-111 в водных растворах In-111 при

pH = 7 [11]. Из этого можно заключить, что в этих растворах In находится в истинно растворенном состоянии, а не в составе твердой фазы гидроокисей, так как если бы In-111 находился в твердых гидроокисях собственно In или Fe, Al и т.п. (даже в коллоидном состоянии), то угловые корреляции носили бы возмущенный характер.

С использованием полученного In-111 проводился цикл экспериментов по исследованию подвижности In в нитратных и перхлоратных средах в широком диапазоне pH методом ЭМ. Возможного влияния примесей химически сходных элементов не обнаружилось. Получение надежных и воспроизводимых результатов также говорит о чистоте исходного радиопрепарата.

Выводы

Предложенная методика позволяет получать In-111 с высокой удельной активностью не только по отношению к стабильным изотопам In, но и к возможным примесям химически сходных металлов. Доля атомов In-111 в получаемых радиопрепаратах по отношению к общему количеству атомов химически сходных металлов достигает порядка 10 процентов. Для сравнительно короткоживущего изотопа получение такой удельной активности при химическом выходе около 80% свидетельствует о перспективности данной методики для решения поставленных задач в областях применения радиоизотопа.

Литература

- [1] Neirinckx R.D., Radiochem. Radioanal. Lett., vol. 4, No.2 (1970), p.152
- [2] Thakur M.L., Nunn A.D., Int. J. Appl. Radiat. Isotop., vol. 23, No. 3 (1972), p. 139
- [3] Das S.K., Guin R., Saha S.K., Appl. Radiat. Isotop., vol. 47, No. 3 (1996), p. 293
- [4] Lewin V.I., Int. J. Appl. Radiat. Isotop., vol. 25, No. 6 (1974), p. 296
- [5] Sharma H.L., Smith A.G., J. Radioanal. Chem., vol. 64, No.1-2 (1981), p.286
- [6] Novgorodov A.F. et al., Preprint 6-84-609 JINR, Dubna, 1984
- [7] Schomacker K., Schwarzbach R., Beyer G.-J., Novgorodov A.F., Appl. Radiat. Isotop., vol. 39, No. 6 (1988), p. 483
- [8] Marhol M., Ion Exchangers in Analytical Chemistry, Moscow, "Mir", 1985
- [9] Vons B. et al., Preprint P6-92-397 JINR, Dubna, 1992
- [10] Demille G.R. et al., Chem Phys. Lett., vol. 4, No.1, (1976), p.164
- [11] Akselrod Z.Z. et al., International Conferende on Nuclear Physics "Nuclear Shells – 50 years" (XLIX Meeting on Nuclear Spectroscopy and Nuclear Structure), April 21 – 24, 1999, Dubna, Russia, p.167

Рукопись поступила в издательский отдел
25 октября 1999 года.