

# RADIONUKLIDOK ELVÁLASZTÁSA

Leírás a Vegyész MSc „Nukleáris analitikai labor” 2. méréséhez

A **radionuklidok elválasztása**<sup>1</sup> mikro- és makromennyiségekben egyaránt fontos feladat. A labormérés a mikroelválasztásra ad egy nem túl hatékony, de azért meggyőző példát, mely a „*similis simili gaudet*” elven alapszik. Bővebben és magyarul: Ha lemondhatunk a **hordozómentes preparátum** előállításáról (most ezt megtehetjük), akkor az exponálással elkülönített **n.c.a.** (*no-carrier-added*: hordozó hozzáadása nélküli) radionuklid-keverékhez célszerű hozzáadni hordozóként azon elemek makroszkopikus mennyiségét (pl. itt vízben oldható sók formájában), amelyek izotópjai közé az elválasztandó nuklidok is tartoznak. Ebben az esetben bármilyen kémiai műveletet hajtunk is végre a kapott oldattal, az elválasztandó nuklidok ugyanúgy fognak reagálni, mint az adott elem többi izotópjá. Ha például az egyik elemet csapadékba tudjuk vinni, akkor az illető radionuklidot is ugyanabban a csapadékfázisban fogjuk megtalálni, mint az elem többi (inaktív) izotópját. Ezen az egyszerű elgondoláson alapszik az az **izotóphordozós lecsapási módszer**, melyet a <sup>212</sup>Pb és a <sup>212</sup>Bi elválasztásához fogunk használni. De ugyanez az alapja a **Hevesy** által kiötlött **izotópos nyomjelzés** módszerének is, mely esetében pl. egy mikromennyiségben hozzáadott radioizotóp nyomon követésével kitalálhatjuk, hogy mi történik az elem egészével.

## 1. A <sup>232</sup>Th bomlási sora

A 4n+0 bomlási sor grafikus megjelenítését az 1. ábrán láthatjuk. A bomlási adatokat (az 1. ábrán **zöld nyilakkal** jelölt ritka bomlások elhanyagolásával) a [Th\\_series\\_data.pdf](#) nevű fájl tartalmazza, a fontosabb  $\gamma$ -vonalak energiájával együtt. Az adatokat a következő helyről szelektáltam: <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>. A sor tömör összefoglalóját az 1. táblázat mutatja.

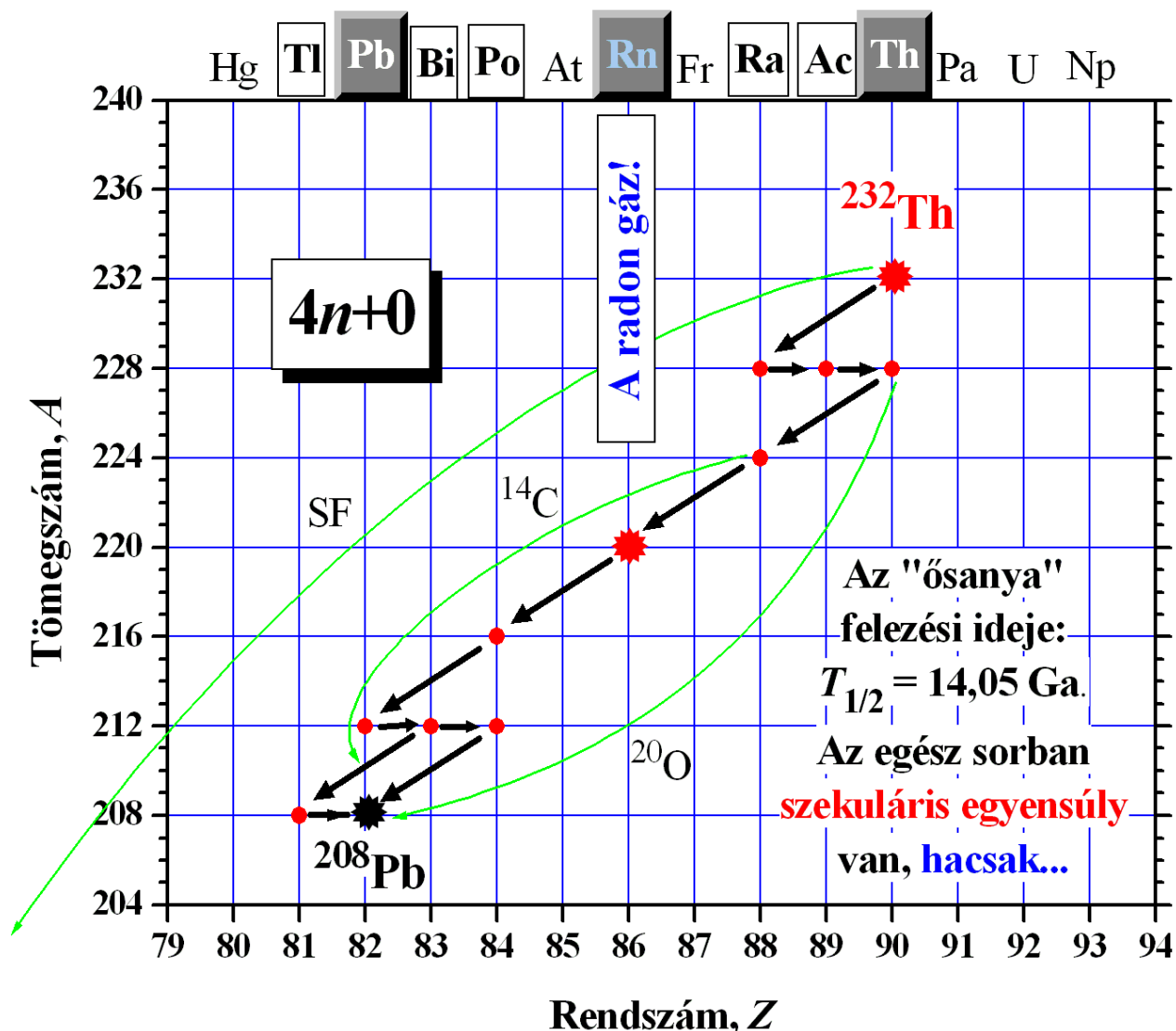
**1. táblázat:** A <sup>232</sup>Th sorában (4n+0 bomlási sor) előforduló nuklidok legfontosabb bomlási adatai

Z	Jel	A	Bomlás	T <sub>1/2</sub>	T <sub>1/2</sub> / s	Szülő	Leány
90	Th	232	$\alpha(100\%)$	14 Ga	4,415E+17		Ra-228
		228	$\alpha(100\%)$	1,9116 a	6,025E+7	Ac-228	Ra-224
89	Ac	228	$\beta(100\%)$	6,15 h	2,214E+4	Ra-228	Th-228
88	Ra	228	$\beta(100\%)$	5,75 a	1,813E+8	Th-232	Ac-228
		224	$\alpha(100\%)$	3,6319 d	3,138E+5	Th-228	Rn-220
86	Rn	220	$\alpha(100\%)$	55,6 s	5,560E+1	Ra-224	Po-216
84	Po	216	$\alpha(100\%)$	0,145 s	1,450E-1	Rn-220	Pb-212
		212	$\alpha(100\%)$	0,299 $\mu$ s	2,990E-7	Bi-212	Pb-208
83	Bi	212	$\beta(64\%)$ $\alpha(36\%)$	60,55 min	3,633E+3	Pb-212	Po-208 Tl-208
82	Pb	212	$\beta(100\%)$	10,64 h	3,830E+4	Po-216	Bi-212
		208	stabil			Po-208 Tl-208	
81	Tl	208	$\beta(100\%)$	3,053 min	1,832E+2	Bi-212	Pb-208

A fenti táblázatban a radon cellájának **hupikék** árnyalása arra emlékeztet, hogy gázzal van szó, s ezért csak akkor lehet az egész bomlássor egyensúlyban egy adott <sup>232</sup>Th preparátumban, ha a radon

<sup>1</sup> A Függelékben két eredeti angol nyelvű szemelvényt olvashatunk néhány elválasztási módszer rövid leírásával. A laborra való felkészüléskor ki kellene szűrni ezekből a lényegét.

nem tud kiszökni belőle. Egy **nyitott preparátum** lezárását követően legalább 5-8 felezési időnek kell elteltie a  $^{220}\text{Rn}$  utáni radionuklidok leghosszabb élettartamú tagjával számolva ( $^{212}\text{Pb}$ ), hogy azt mondhassuk: az egyensúly az egész láncban helyreállt már.



**1. ábra:** A  $^{232}\text{Th}$  bomlási sora a négy fő bomlási sor közül a lelassúbb. Ez az egyike a természetben (értsd: a Földön) előforduló három bomlási sornak, melyek mind egy-egy stabil ólomizotóppal végződnek<sup>2</sup>. Az ábrán látszik, hogy a többi bomlássorhoz hasonlóan, itt sincs szó szigorú értelemben bomlások egymást követő sorozatáról, ti. a fekete nyilakkal jelzett alapfolyamatok ( $\alpha$ : ↖, ill.  $\beta^-$ : →) kinetikai hálót alkotnak, nem pedig sort. (Az elválasztandó nuklidok egyike is éppen egy ilyen „necces” helyen van.) A zöld nyilakkal jelzett ritka bomlások közül az egyik „levágja a kanyarokat” a  $4n+0$  soron belül ( $^{20}\text{O}$  klaszterbomlás), a másik a  $4n+2$  bomlássorba visz át ( $^{14}\text{C}$ ), míg a spontán hasadás (SF) jóval túlszalad az ólmon a stabilitási völgy vassal és nikkellel „fémjelzett” minimuma irányában.

<sup>2</sup> A negyedik fő bomlási sor (mely gyorsasága folytán rég eltűnt már a Föld színéről mint természetes sor) a legnehezebb (*lényegében*) stabil elemmel, a bizmuttal zárul, melynek csak egy (*majdnem*) stabil izotópja van.

## 2. Mérések

### 2.1. Helyszínek, eszközök és anyagok

1. **Pozitronlabor:** Számítógépes mérőhely gamma-spektrum felvételéhez alkalmas kiegészítővel és hűtött HPGE detektorral.  $^{22}\text{Na}$  kalibráló forrás és  $^{232}\text{Th}$  forrás [ $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  formájában].
2. **Exponáló helyiség:** Exponálóedény (benne 83 g  $^{232}\text{ThO}_2$  preparátum és 2 exponálás alatt álló **platinalemez**), tápegység, csipesz, csavarhúzó és 2 exponálatlan platinalemez.
3. **Hallgatói labor:** Vízfürdő, gumikesztyű, csipesz, 25 ml-es főzőpohár, üvegbot, mérőhenger, pipetták, vízszugárszivattyú, szívópalack, szétszedhető szűrő szűrőpapírral.  $0,3 \text{ mol/dm}^3 \text{ HNO}_3$ , 10%-os  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ , 2%-os  $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3$ , cc.  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , desztillált víz, etanol.

### 2.2. A teendők összefoglalása, ajánlott műveleti sorrend

1. Ellenőrizzük, hogy a **vízfürdő** be van-e kapcsolva. Kb. 15 percig tart, míg felmelegszik.
2. A gamma-spektrométer mindkét szektorának (H1 és H2) **energiakalibrálása**  $^{22}\text{Na}$  forrással. Lásd a Marek Tamás által írt anyag adaptációját ([Marek\\_hpge09v2-01\\_NaSa.pdf](#)), melyben az eltéréseket sárgítás emeli ki, ill. a betoldások egy része buborékban van. Ezt a segédletet használjuk az összes gamma-spektrum felvételéhez.
3. A **tórium-spektrum** felvételének elindítása az egyik kalibrált szektorban. Amíg az elválasztással szöszmötölünk (kb. 30-40 perc) jól kiértékelhető spektrum jön össze
4. A két **exponált platinalemez** kiszedése és új lemezek **exponálásának** indítása. A leírást ebben a dokumentumban találjuk, ahogy a következő pont preparatív részének leírását is.
5. Az egyik platinalemezről leoldjuk a  $^{212}\text{Pb}/^{212}\text{Bi}$  nuklidkeveréket, elvégezzük a  $^{212}\text{Pb}$  **elválasztását**.
6. A radioaktív csapadékot tartalmazó szűrőt, a nedves csapadékot tartalmazó szűrőpapírig visszabontva (de azt a helyén hagyva), haladéktalanul átvisszük a gamma-mérőhelyre. Itt leállítjuk a tóriumos mérést (jegyezzük fel a mérési időt), és a másik kalibrált szektorban nyomban elkezdjük mérni a **csapadék gamma-spektrumát**. Igyekezni kell, mert elválasztás után folyamatosan újratermelődik a  $^{212}\text{Bi}$ . Ha elég közel tesszük a forrást a detektorhoz (ne érjen hozzá!), akkor 15-20 perc alatt jól kiértékelhető spektrumot kapunk.
7. Gyors **Peak Search/Peak Report (prn)**, **szemrevételezés** mindkét megmért spektrum esetében. Mentsük el a spektrumokat **bináris fájlként**.
8. Töröljük az egyik elmentett spektrumot, és mérjük meg az érintetlenül hagyott **platina spektrumát**. Aztán kövessük a 7. pontban leírtakat.
9. Mint a 8. pontban, csak **háttérspektrumot** mérünk, hogy lássuk, mi minden van a laborban.
10. A két platinát visszavisszük az exponáló helyiségbe.

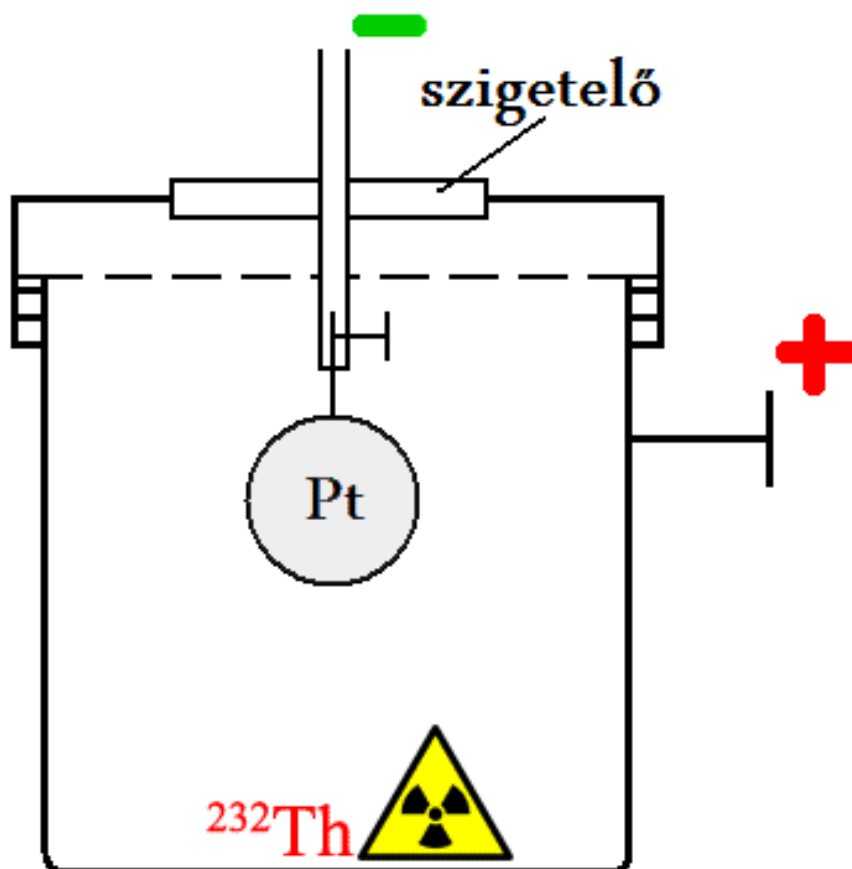
### 2.3. $^{212}\text{Pb}$ kigyűjtése radontartalmú levegőből elektromos tér segítségével

A  $^{220}\text{Rn}$  gáztérbe juttatásához és a  $^{212}\text{Pb}$  kigyűjtéséhez a 2. ábrán látható exponálóedényt használjuk. Az edény rozsdamentes acélból készült, lecsavarható fedelén és oldalán elektromos hozzávezetéssel. A fedél tömítéssel csatlakozik az edényhez, hogy megakadályozza a radioaktív gáz elterjedését a külső légtérben. Az edény fedelének belső oldalán négy platinalemez befogására van mód. A lemezek drótszárát szorítócsavar rögzíti az edény fedeléhez. Exponálásakor az edény fala és a lemez közé 220-300 V egyenfeszültséget kapcsolunk úgy, ahogy az ábra mutatja.

Az exponálóedény lezárása és a feszültség bekapcsolása után, a platinára levált  $^{212}\text{Pb}$  mennyisége (és aktivitása) eleinte nő az idő függvényében, majd (kb. 60-70 óra után) állandó értéket ér el, miközben ~egyensúlyba kerül leánynuklidjával ( $^{212}\text{Bi}$ ).

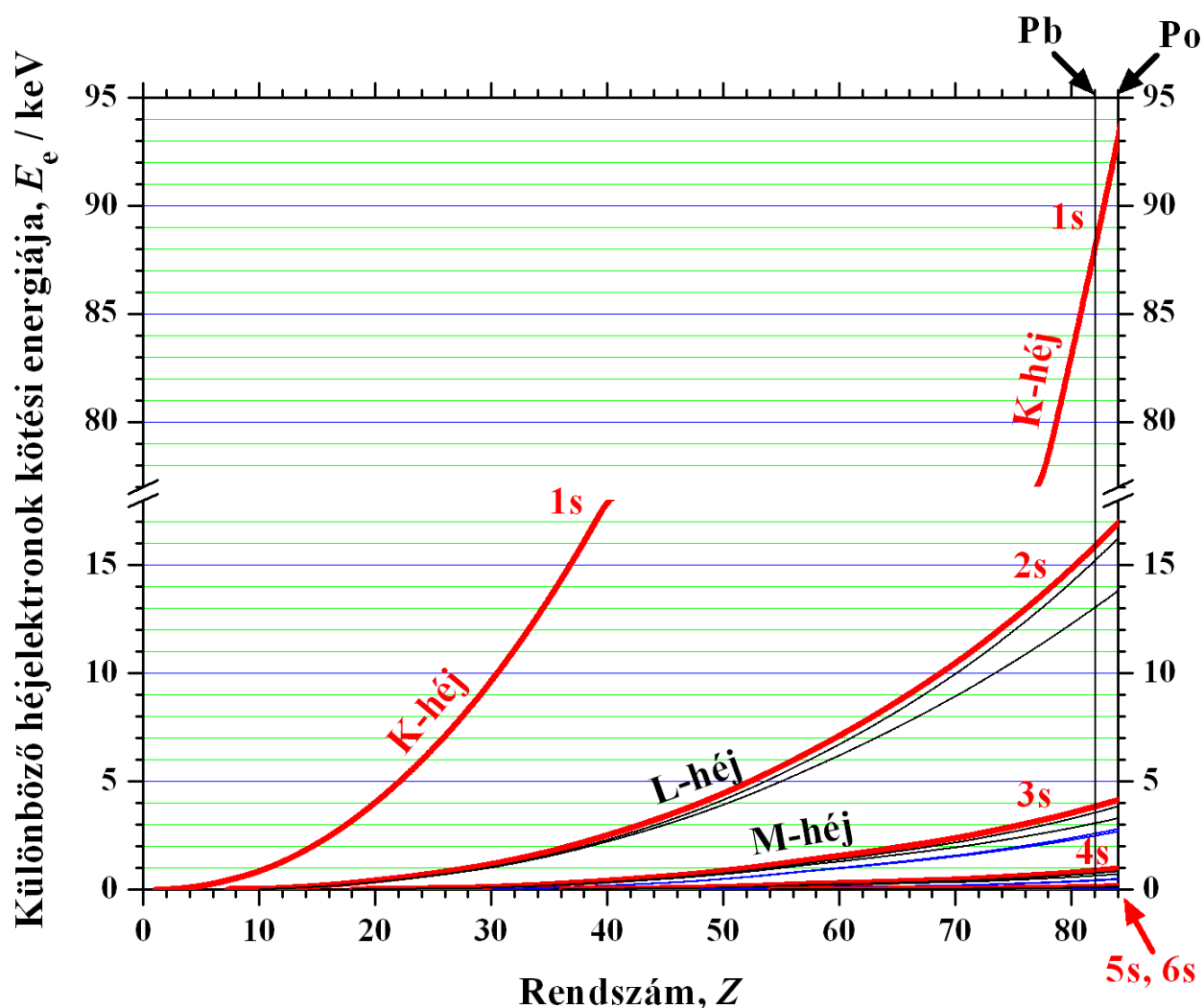
A gyakorlatvezető jelenlétében kapcsoljuk le az exponálóedényhez csatlakozó tápegységet. Húzzuk ki a banándugókat. **Ne fogdossuk a dugók végét**, mert a tápegység kondenzátora lassan sül ki.

**Nyissuk ki a tárolóhelyiség ablakát** szellőztetés végett, és tekerjük le az edény fedelét. Olyan, mint egy befőttesüvegé, csak többet kell rajta tekerni, mert hosszabb a menete. A letekert fedél alján két exponált platinát kell találnunk, ha az előző csapat rendesen dolgozott. Csavarhúzóval lazítsuk ki a tartókat, és csipesszel szedjük ki a két lemezt. Egyiket közvetlenül fogjuk mérni, a másik a nuklidelválasztáshoz lesz. A két kiszedett lemez helyére tegyünk be két másikat. Ügyeljünk arra, hogy a platina (és drótszára) csak a szigetelt tartóhoz érjen, az edény többi részéhez ne, mert különben **rövidzárlatot okozunk**. Tekerjük vissza a fedelet, dugjuk vissza a vezetékeket, és kapcsoljuk be a tápegységet, hogy **a következő társaságnak legyen mivel dolgoznia legközelebb**.



**2. ábra:** Exponáló berendezés. A  $^{232}\text{Th}$ , a természetben található egyetlen tóriumizotóp, 83 g  $\text{ThO}_2$  alakjában van az edény aljában. A tórium bomlása folyamatosan pótolja a zárt gáztérbe diffundáló, majd ott hamar elbomló  $^{220}\text{Rn}$ -t<sup>3</sup>. A radon leánynuklidja, a  $^{216}\text{Po}$ ,  $\alpha$ -bomló. Noha a szimpla anyagmérleg szerint  $^{212}\text{Pb}^{2-}$  volna a bomlás naivan várható eredménye, valójában számos elektron leszakad, és végül is pozitív ólomionok keletkeznek (hogya miért, az a **3.** ábrából érzékelhető), melyek a negatív elektródként alkalmazott platinalemezre gyűlnek ki az elektromos tér hatására. Az eredmény: nagy **fajlagos aktivitású**  $^{212}\text{Pb}$  kiválása a platina felületén, mely azonban  $^{212}\text{Bi}$  szennyezőt is tartalmaz. A bizmut (rövid élettartamú leánynuklidjaival együtt) az exponálás ideje alatt gyülemlik fel, s néhány óra alatt radioaktív egyensúlyba kerül a radioaktív ólommal és persze a saját utódjaival is.

<sup>3</sup> A  $^{220}\text{Rn}$  az a radonizotóp, melyet régi beidegződés miatt a szakirodalom környezeti sugárforrásokkal foglalkozó része még ma is „**toron**” néven emleget. **Mi nem használjuk ezt a nevezéktant**, de nem árt tudni róla, mert ugyanezek az irodalmi források a „**radon**” kifejezés alatt a radon elem leghosszabb élettartamú izotópját, a  $^{222}\text{Rn}$ -t értik, nem pedig magát az elemet (ill. nem lehet tudni, hogy mit). Ezek az elnevezések abból a korból erednek, amikor a természetes bomlássorok tagjainak még saját nevet adtak. A „**radon**”, ill. a „**toron**” eredetileg a „**radium emanation**”, ill. a „**thorium emanation**” kifejezés lerövidítéseként keletkezett, s csak később terjedt el az első név a radon mint elem megjelöléseként. Az *emanation* szó nagyjából a magyar *kisugárzás* szóval egyenértékű átvitt értelemben is. Vagyis a kifejezés eredetileg azt jelentette, hogy az a valami, amit a rádium, ill. a tórium kisugároz/kibocsát magából.



**3. ábra:** Ez az ábra rávilágít arra, hogy mért pozitív ionok formájában található az  $\alpha$ -bomlással keletkező  $^{212}\text{Pb}$  az exponáló edény gázterében. Amikor a mag rendszáma kettővel csökken, a  $^{216}\text{Po}$  anyanuklid magja által eredetileg „fogva tartott” héjelektronok hirtelen jóval gyengébb Coulomb-kötéléket érzekelnek, mint a bomlás előtt. Más szóval, a leányatom gerjesztett „állapotban” találja magát. Vegyük figyelembe, hogy a Po K-elektronjainak (1s) kötési energiája  $\sim 93$  keV, a Pb-é pedig „csak”  $\sim 88$  keV ([http://xdb.lbl.gov/Section1/Table\\_1-1c.htm](http://xdb.lbl.gov/Section1/Table_1-1c.htm)). A különbség csupán a két K elektront tekintve is  $\sim 10$  keV-et tesz ki. Ez több külső elektron „elpárologtatásához” is elegendő, hiszen a 18-77 keV közt megszakított energiatengelyű ábra alsó részéből jól látszik, milyen kicsi is az  $n = 4-6$  főkvantumszámú héjak kötési energiája a változáshoz képest a  $\text{Po} \rightarrow \text{Pb}$   $\alpha$ -bomlás esetében. A radioaktív bomlás általában vége is hatalmas sokként éri az atomot, amelyben hirtelen „semmi sincs a helyén”.<sup>4</sup>

<sup>4</sup> A negatív  $\beta$ -bomlás esetében a „papírforma” érvényesül (+1 töltésű ionok keletkeznek). EC vagy  $\gamma$ -bomlás (azon belül belső konverzió) esetében azonban az Auger-effektus miatt többszörösen töltött pozitív ionok alakjában is számítani lehet a leány nuklidokra gázterben ([http://prola.aps.org/abstract/PR/v93/i1/p182\\_1](http://prola.aps.org/abstract/PR/v93/i1/p182_1)).

## 2.4. $^{212}\text{Pb}$ elválasztása a $^{212}\text{Bi}$ leány nuklidtól izotóphordozós lecsapással

A platinalemezre leválasztott  $^{212}\text{Pb}$ -t (és az azt szennyező mintegy 10%  $^{212}\text{Bi}$ -t)  $10\text{ cm}^3$   $0,3\text{ mol/dm}^3$  koncentrációjú  $\text{HNO}_3$ -val oldjuk le 10-15 perces vízfürdön való melegítéssel. Ha 25 ml-es főzőpoharat használunk, akkor a salétromsav teljesen ellepi a ferdén beleállított Pt-lemezt. Leoldás után kiemeljük a lemezt az oldatból, és mielőtt félre tennénk, desztillált vízzel leöblítjük. Nagyon kis aktivitásról lévén szó, a mosóvíz közvetlenül a lefolyóba mehet (persze a platina nélkül, mert az drága, és csak 4 darab van belőle :). **Minden preparatív műveletet gumikesztyűben kell végezni!**

A radionuklid-keveréket tartalmazó salétromsavhoz  $1\text{ cm}^3$  ólom(II)-nitrát- és  $5\text{ cm}^3$  bizmut(III)-nitrát-oldatot adunk. Miután összekevertük, néhány (3-4) csepp tömény kénsavval leválasztjuk a  $^{212}\text{Pb}$ -t ólom(II)-szulfát alakjában. A csapadék keverés közben gyorsan és (kissé túl) jól ülepszik. Ezért a folyadék tisztájának nagy részét óvatosan áttöltjük egy másik főzőpohárba. (Ha akarjuk, egy csepp kénsav hozzáadásával ellenőrizhetjük, nem akar-e még kiválni valami belőle.) A csapadékot felrúzzuk a kevés maradék folyadékban, s miközben a szívatás megy (ez alatt nem a ZH-t értem :), a zagyot átlötyintjük a szétszedhető szűrőbe. A pohárban makacskodó üledékre visszatöltünk egy keveset a dekantált folyadékból, s felrúzás után „átsegítjük” a szűrőbe, hogy minél nagyobb aktivitású mintát kapjunk. A csapadékot szikkadtra szívás után némi vízzel átmoszuk. Nem kell megvárni a teljes száradást, mert a  $\gamma$ -sugárzás úgymint kijön a vékony mintából, viszont a nedves csapadék szétszóródásától nem kell (annyira) tartanunk. Ezután kivesszük a szétszedhető szűrőt, lecsavarjuk a tetejét, óvatosan levesszük a távtartó plexicsövet, hogy ne rántsa magával a szűrőpapírt a csapadékkal. Végül betesszük a csapadékot tartalmazó alsó részt a „hi-tech” mintatartóba, és átsietünk vele a pozitronlaborba, hogy haladéktalanul felvegyük a spektrumát.

## 3. A jegyzőkönyv

A szokásos elvárásokon kívül (szeretem, ha a jegyzőkönyv jelentést formáz) a jegyzőkönyvnek választ kell adnia a következő kérdésekre:

1. Milyen spektrumvonalak alapján lehet leginkább következtetni az egyes mintákban található  $^{212}\text{Pb}$  és  $^{212}\text{Bi}$  mennyiségére közvetlenül és/vagy közvetve?
2. Milyen radionuklidok mutathatók ki az egyes mintákban, valamint a környezetben? (Az utóbbihoz mértük a háttérspektrumot.)
3. Milyen arányban változik a  $^{212}\text{Pb}$  és  $^{212}\text{Bi}$  atomaránya, ha összevetjük a  $^{232}\text{Th}$ -ről, az exponált Pt-lemezről, valamint a csapadékmintáról felvett spektrumok adatait? Értelmezést is kérek.
4. Egyensúly esetén milyen radioaktív atomarányok várhatók az exponált platinán? A mérések eredménye megfelel-e a várakozásunknak? Akár igen, akár nem, indoklást is várok.
5. Szekuláris egyensúlyt feltételezve és az exponálóedényt **zárt sugárforrásnak** tekintve:
  - Mekkora aktivitás van az exponálóedényben?
  - Mekkora ebből az alfa-aktivitás?
  - Hány g tórium van az edényben, és mennyi ebből a  $^{228}\text{Th}$ ?

## 4. Szemelvények angol nyelven

### 4.1. *J. N. Mundy: Solid state: nuclear methods*

#### 1.2.4. Chemical Processing in Radioisotope Production

In the case of transmutation reactions, induced by either charged-particle or fast-neutron bombardment, the desired radioisotope is a chemically different species from the target. It must, in most cases, be separated chemically from the relatively large amount of inert target material and the radioisotopes of other elements that have been formed (see Fig. 4). In the case of radioisotopes formed by thermal-neutron capture, the isotope being produced is chemically the same as the target material. However, radioisotopes of other elements (radioimpurities) can be formed, either by fast-neutron-induced transmutation reactions on the main constituent of the target or by thermal-neutron capture by an impurity. If these radioimpurities cannot be discriminated out in the counting scheme (see Chapter 1.4), they have to be separated chemically. Chemical processing not involving separations is sometimes necessary to change the chemical form of the radioisotope; examples of this are given in Section 1.3.2.2.

The chemical processes used in the separation of radioisotopes cover the whole range of techniques developed for classical chemical analysis; only the most common methods will be outlined here. First, it is important to note the special limitations imposed by the nature of radioisotopes. These include the requirement for speed in the chemical separation of short-lived isotopes and the necessity for remote handling of high activity levels. The small scale of radioisotope separation is another important factor, as both the desired radionuclide in the case of a transmutation reaction and the undesirable impurity in the case of a neutron-capture reaction are present in very low concentrations.

A nonradioactive carrier that is chemically the same as the radioisotope to be separated may be added. This facilitates the use of several purification techniques, as discussed below. This procedure changes only the radiochemical purity, not the chemical purity, of the final product. (In evaluating the stated purity of radioisotopes, it is important to note whether chemical or radionuclidic purity is quoted.) Care must be taken to add a carrier in the same valence state as the radioisotope. In those cases where the radioisotope can exist in several valence states, the system (radioisotope plus carrier) is usually taken through a suitable oxidation–reduction cycle before the separation process is started. Carriers are not always necessary for all of the interfering radioisotopes in some chemical processes; several elements may behave sufficiently alike that traces of one will be carried by macroscopic quantities of another.



**Carrier-free isotopes** are useful for experiments that require high dilution factors because of the low solubility of the radioisotope in a particular matrix and for applications in which the layer thickness must be minimized. The term “carrier-free” strictly means that no carriers, i.e., inactive isotopes of the same element, are present. However, in real life, small amounts of the inactive element may be present in the target or reagents; in practice, radioisotopes are classified as “carrier-free” when they contain no weighable amounts (i.e.,  $< 1 \mu\text{g}$ ) of stable isotopes of the same element.

If carriers cannot be added, as in the case of a transmutation-reaction product that is to be kept carrier-free, the range of available purification techniques is more limited. Another problem with carrier-free isotopes is that because of their very low concentrations, undesirable reactions not encountered at higher concentrations may become important. An example is absorption of carrier-free  $^{105}\text{Ag}$  from dilute HCl solution by exchange with  $\text{Na}^+$  ions in the walls of the glass container holding the solution. The following summary of chemical separation techniques for radioisotopes distinguishes those which are and are not applicable to the purification of carrier-free radioisotopes.

**Filtration.** Simple filtration through filter paper or sintered glass can remove carrier-free radioisotopes from a neutral solution. The method has been used in the purification of  $^7\text{Be}$ ,  $^{47}\text{Ca}$ , and  $^{206}\text{Bi}$ .

**Precipitation.** Solid radioisotopes can be deposited from solution either by the addition of a chemical reagent or by exposure to an external energy source, such as heat. Since precipitation usually requires addition of a carrier, this method is used mainly for removal of radioimpurities. Normal analytical techniques use slow precipitation so that large, well-shaped crystals are formed and separation is easily accomplished by filtration and washing. Small precipitates (colloids) are not so easy to separate, but can absorb undesirable radioisotopes that are present in extremely low concentrations (coprecipitation). Ferric hydroxide is used as a “scavenger” of radioisotopic impurities because of its ability to cause coprecipitation. The precipitate can be removed by filtration, ion exchange, solvent extraction, or centrifugation.

**Solvent Extraction.** The carrier element is converted from ionic form in aqueous solution into a nonpolar form that can be extracted into an organic solvent. The method is simple, specific, and fast. A large variety of extraction systems have been developed for radiochemical separations. (The NAS series on the radiochemistry of the elements includes solvent extraction procedures for almost all the elements; see “Source Preparation” in the Bibliography after Chapter 1.4.)

**Ion Exchange.** The target is dissolved, and the resulting solution is passed through a column of either cation- or anion-exchange resin; the various ions are eluted from the column with suitable solvents. A high separation efficiency can be obtained with slow flow rates and a high resin-to-ion ratio. In practice, a compromise is made between the efficiency and the speed of the operation. The method can be used for the preparation of carrier-free radioisotopes. The ion-exchange technique is suitable for a wide variety of separations and can be readily automated, giving improved reproducibility and reliability.

**Electrodeposition.** By passage of current through an electrolytic cell, particular radioisotopes (either the desired species or the contaminants) are plated out. The concentration of ions in the electrolytic cell must be sufficient for electrolysis to occur. For this reason, a carrier for the ions to be plated must usually be added, and carrier-free radioisotopes can only be purified if they remain in the electrolyte. To minimize the volume of added carriers, small-volume electrolytic cells have been used (see Chapter 1.3). The separation of two cations can be achieved by controlling the applied potential so that the deposition potential of only one of the cations is exceeded.

**Distillation.** This technique only applies to those targets in which the desired element or compound is much more volatile than the matrix in which it is embedded. It can be used to prepare carrier-free radioisotopes if they meet this criterion.

Chemical processing may also be needed in the initial preparation of the target. The target element may be highly chemically reactive, may have impurities with undesirable nuclear cross sections, or may be in an undesirable chemical compound. Processing may be necessary to produce an irradiation target of the appropriate shape and size or to prepare it for encapsulation. The procedures required for the production of  $^{24}\text{Na}$  provide an example of simple processing. Metallic Na (monoisotopic  $^{23}\text{Na}$ ) is too reactive for easy handling throughout the entire irradiation and postirradiation process. However, high-purity sodium chloride, free of significant quantities of contaminants with large neutron cross sections, is commercially available. Irradiation of 2 mg of NaCl in a thermal-neutron flux of  $10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  for two days will produce  $\sim 2 \text{ mCi}$  of  $^{24}\text{Na}$  and  $\sim 0.5 \text{ mCi}$  of  $^{38}\text{Cl}$ . The  $^{38}\text{Cl}$  has a short half-life ( $T_{1/2} = 37 \text{ min}$ ) and will be undetectable after a few hours. The 2 mg of NaCl have dimensions  $1 \times 1 \times 1 \text{ mm}$  and so can be cleaved from a single crystal. However, when microcurie quantities of  $^{24}\text{Na}$  are required, it is easier to dissolve the NaCl in high-purity water and take an aliquot. The solution can be evaporated to dryness in a quartz tube, and the tube can be sealed in an argon atmosphere.

In general, it is advantageous to carry out as much of the processing as possible on inactive material. On the other hand, great care has to be taken not to introduce impurities during preirradiation processing that would form undesirable radioisotopes during the irradiation.

## 4.2. C. B. Sampson: *Textbook of radiopharmacy: theory and practice*<sup>5</sup>

### 2.3 RADIONUCLIDE SEPARATION TECHNIQUES

Although the ion exchange technique has come to be the most common, there are several methods of separating one isotope from another.

#### 2.3.1 Precipitation

This is the simplest technique, where the parent can be prepared in an aqueous solution and the daughter subsequently precipitated out by addition of a chemical forming an insoluble compound of the daughter. The latter may be separated by filtration or centrifugation. An example is the Cs-137/Ba-137 system, caesium chloride or nitrate being highly soluble. Although the number of barium atoms formed in solution is too small to form a precipitate, the addition of inactive 'carrier' barium in the form of soluble barium sulphate by the subsequent addition of a soluble sulphate.

#### 2.3.2 Distillation

This method is used to separate a volatile daughter from a solution of the parent and is the method used to prepare I-131 commercially from its Te-131 parent. The telluric acid produced by dissolving tellurium in nitric acid is heated gently so that the iodine boils off. The vapour is condensed into water containing a mild reducing agent, becoming entrapped in the form of the non-volatile iodide ion.

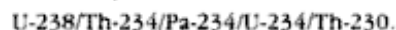
#### 2.3.3 Gas evolution

If the parent can be prepared in solution form, with the daughter being a gas, the latter can be separated by bubbling an insoluble carrier gas through the solution. An example in clinical use, the Rb-81/Kr-81m generator, is described in detail below.

#### 2.3.4 Solvent extraction

In this case, the separation utilises two immiscible solvents, the parent being soluble in one while the daughter is soluble in the other. The daughter atoms produced in the parent solution will gradually migrate into the other solvent, but only very slowly. If the mixture is shaken, however, almost all the daughter atoms will be exposed to the second solvent; if the two solvents are then permitted to separate (either naturally or by centrifugation), the daughter activity may be drawn off. An example with which many schoolchildren will become familiar is the protactinium generator used to demonstrate radioactive decay. Protactinium-234 is a

member of the decay chain



Uranyl nitrate can be dissolved in concentrated hydrochloric acid, to which is added pentyl ethanoate (less dense and water-immiscible). Protactinium forms into a complex acid which is soluble in the pentyl ethanoate (thorium is not), so that when the liquids are shaken and allowed to separate, the Pa-234 is extracted into the organic layer.

#### 2.3.5 Sublimation

This was the method used by Perrier and Segre to separate Tc from Mo in 1937 and has been used (Boyd and Robson, 1968) in a large-scale generator system. The parent material is prepared in solid form (usually powder), placed in a temperature-controlled furnace and heated to the appropriate temperature; a carrier gas (oxygen) is blown through the bed and separation achieved because the daughter oxide is volatile at the selected temperature while the parent oxide is not. A terminal filter permits gas containing the daughter activity to pass through but traps any entrained particles of the parent material. In the sublimation Tc generator, oxygen is passed over heated molybdenum trioxide and the resulting technetium heptoxide gas is collected by bubbling through sterile saline. Separation efficiencies of 50% can be achieved.

#### 2.3.6 Ion exchange

This technique has come to dominate generator technology because of its convenience (for the user, although not necessarily the manufacturer) and capability of incorporation into closed systems. Although the early materials used were the natural zeolites, most modern exchangers are synthetic. There are both organic and mineral exchange materials, the latter having a superior resistance to radiation damage. The most common mineral exchanger is alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Most organic exchangers are formed by polymerising styrene; the amount of crosslinking present in the resulting lattice structure is adjusted by the addition of a proportion of divinylbenzene. Exchangeable atoms are then introduced into the lattice at random. To produce a cationic exchanger, free acidic acid groups (such as sulphonic acid) are used to provide replaceable hydrogen atoms while, for an anionic exchanger, quaternary amine groups have replaceable hydroxyl ions. There are approximately 10<sup>24</sup> exchangeable atoms per kg of exchanger, so that even 1g will exchange up to 10<sup>21</sup> atoms. The exchanger particles have sizes commonly in the range of 80–160 μm, sometimes referred to as 100–200 mesh. Generators using the ion exchange technique are often termed chromatographic systems, the exchanger material being packed into a glass chromatographic column and held in place by glass frits which permit the passage of liquid.

<sup>5</sup> Megjegyzés: Ez a szemelvény az előzővel szemben korrekt nevezéktant használ: nem keveri a nuklidot az izotóppal.