



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21)(22) Заявка: 2014121456/05, 27.05.2014

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
27.05.2014

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 27.05.2014

(43) Дата публикации заявки: 10.12.2015 Бюл. № 34

(45) Опубликовано: 20.02.2016 Бюл. № 5

(56) Список документов, цитированных в отчете о
поиске: RU 2230032 C2, 10.06.2004. RU 2102810
C1, 20.01.1998. WO 2012167036 A1, 06.12.2012.

Адрес для переписки:

433510, Ульяновская обл., г. Димитровград, ОАО
"ГНЦ НИИАР"

(72) Автор(ы):

Корнилов Александр Степанович (RU),
Буткалюк Павел Сергеевич (RU),
Буткалюк Ирина Львовна (RU)

(73) Патентообладатель(и):

Открытое акционерное общество
"Государственный научный центр Научно-
исследовательский институт атомных
реакторов" (RU)

(54) СПОСОБ ВЫДЕЛЕНИЯ РАДИОНУКЛИДА КАДМИЙ-109

(57) Реферат:

Изобретение относится к области радиохимии и может быть использовано в технологии получения радиоактивных изотопов и аналитической химии. Способ выделения радионуклида кадмий-109 раствора, содержащего радионуклиды кадмия и серебра, заключается в растворении облученного серебра в азотной кислоте, упаривании до влажных солей полученного раствора, растворении образовавшихся нитратов и осаждении основного

карбоната кадмия избытком осадителя. Осаждение основного карбоната кадмия проводят в присутствии нитрата и гидроксида аммония с концентрациями: $[\text{NH}_4\text{NO}_3] \geq 0,1$ моль/л и $0,2 \leq [\text{NH}_4\text{OH}] \leq 0,8$ моль/л. В качестве осадителя используют раствор карбоната или гидрокарбоната натрия или калия. Изобретение позволяет повысить коэффициент очистки кадмия без необходимости регенерации серебра. 1 ил., 2 табл.

RU
2 575 886
C2

RU
2 575 886
C2



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(19) **RU** (11) **2 575 886** (13) **C2**

(51) Int. Cl.

C01G 11/00 (2006.01)

G21G 5/00 (2006.01)

(12) ABSTRACT OF INVENTION

(21)(22) Application: 2014121456/05, 27.05.2014

(24) Effective date for property rights:
27.05.2014

Priority:

(22) Date of filing: 27.05.2014

(43) Application published: 10.12.2015 Bull. № 34

(45) Date of publication: 20.02.2016 Bull. № 5

Mail address:

433510, Ul'janovskaja obl., g. Dimitrovgrad, OAO
"GNTs NIIAR"

(72) Inventor(s):

Kornilov Aleksandr Stepanovich (RU),
Butkaljuk Pavel Sergeevich (RU),
Butkaljuk Irina L'vovna (RU)

(73) Proprietor(s):

Otkrytoe aktsionernoe obshchestvo
"Gosudarstvennyj nauchnyj tsentr Nauchno-
issledovatel'skij institut atomnykh reaktorov"
(RU)

(54) METHOD FOR EXTRACTION OF RADIONUCLIDE CADMIUM-109

(57) Abstract:

FIELD: chemistry.

SUBSTANCE: method for extraction of radionuclide cadmium-109 solution, which contains cadmium and silver radionuclides, consists in dissolution of irradiated silver in nitric acid, evaporation of obtained solution to humid salts, dissolution of formed nitrates and precipitation of main cadmium carbonate with excess of precipitating agent. Precipitation of main cadmium carbonate is carried out

in presence of nitrate and ammonium hydroxide with concentrations: $[\text{NH}_4\text{NO}_3] \geq 0.1 \text{ mol/l}$ and $0.2 \leq [\text{NH}_4\text{OH}] \leq 0.8 \text{ mol/l}$. As precipitating agent solution of sodium or potassium carbonate or hydrocarbonate is applied.

EFFECT: invention makes it possible to increase coefficient of cadmium purification without necessary of silver regeneration.

1 dwg, 2 tbl

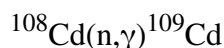
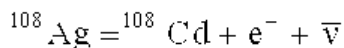
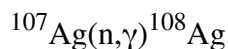
R U 2 5 7 5 8 8 6 C 2

R U 2 5 7 5 8 8 6 C 2

Изобретение относится к области радиохимии и может быть использовано в технологии получения радиоактивных изотопов и аналитической химии.

Радионуклид кадмий-109 применяется для изготовления эталонных источников ионизирующего излучения.

Известно получение изотопа ^{109}Cd путем облучения серебра нейтронами по реакциям



и последующей его очистки.

При облучении изотопнообогащенного ^{107}Ag в течение полугода в высокопоточном реакторе выход кадмия составляет ~50% от массы облучаемого серебра. Помимо основного продукта реакции при облучении образуются значимые количества

радионуклида $^{110\text{m}}\text{Ag}$. Последующая химическая переработка облученного образца проводится с целью очистки ^{109}Cd от $^{110\text{m}}\text{Ag}$ и получения требуемой химической формы препарата.

Известен способ экстракционного разделения радионуклидов серебра и кадмия [Левин В.И. Получение радиоактивных изотопов. - М.: Атомиздат, 1972, с. 182], заключающийся в приготовлении раствора кадмия и серебра в смеси роданида аммония и ацетата натрия, последующей экстракции кадмия смесью пиридина с хлороформом и реэкстракции кадмия азотной кислотой.

Недостаток способа - неполное разделение компонентов.

Известен способ ионообменного разделения радионуклидов серебра и кадмия [Разбаш А.А., Севастьянов Ю.Г., Маклачков А.Г., Алексеева Л.Г., Радиохимия, 1981, т. 23, №3, с. 442], основан на сорбции Ag и Cd на сильноокислом катионите КРС-8п из смеси азотной и плавиковой кислот, элюировании кадмия раствором плавиковой кислоты, десорбции серебра раствором азотной кислоты.

Недостатками данного способа являются неполное разделение компонентов и использование плавиковой кислоты, вызывающей коррозию защитного оборудования.

Наиболее эффективным и технологичным является способ разделения радионуклидов серебра и кадмия [Патент RU №2230032 C2, 10.06.2004], заключающийся в осаждении металлического серебра из 0,1-2 моль/л HNO_3 в присутствии нитрата гидразония и

углеродного сорбента СКН. Далее кадмий осаждают из маточного раствора каким-либо известным способом и переводят в нужную химическую форму. При равной исходной активности ^{109}Cd и $^{110\text{m}}\text{Ag}$ коэффициент очистки кадмия от серебра равен приблизительно 500.

Поскольку изотопнообогащенное ^{107}Ag является дорогостоящим стартовым материалом, то осажденное серебро подлежит регенерации для повторного использования. Для этого углеродный сорбент СКН с осажденным на нем металлическим серебром обрабатывают азотной кислотой, растворенное изотопнообогащенное ^{107}Ag регенерируют любым известным способом в металлическое серебро для повторного цикла облучения.

Недостатками данного способа являются низкий коэффициент очистки кадмия от серебра, а также необходимость регенерации ^{107}Ag .

Задача предлагаемого технического решения - повышение коэффициента очистки

кадмия без необходимости регенераций серебра.

Для решения вышеуказанной задачи в способе выделения радионуклида кадмий-109 растворяют мишени облученного серебра в азотной кислоте, упаривают полученный раствор до влажных солей, растворяют образовавшиеся нитраты и осаждают основной карбонат кадмия избытком осадителя в присутствии нитрата и гидроксида аммония с концентрациями: $[\text{NH}_4\text{NO}_3] \geq 0,1$ моль/л и $0,2 \leq [\text{NH}_4\text{OH}] \leq 0,8$ моль/л.

В качестве осадителя используют раствор карбоната натрия или гидрокарбоната натрия.

В качестве осадителя используют раствор карбоната калия или гидрокарбоната калия.

При добавлении раствора аммиака к солям металлов, образующих комплексные аммиакаты, сначала образуется осадок гидроокисей, который затем растворяется в избытке аммиака. В присутствии солей аммония в процессе растворения образуется меньшее количество осадка гидроксидов и при определенном соотношении концентраций ионов аммония и металла, растворение солей происходит без промежуточного образования осадка.

Кадмий и серебро образуют малорастворимые карбонаты и растворимые аммиачные комплексы [Справочник химика т. 3, с. 124, 229, изд. «Химия»]. Произведения

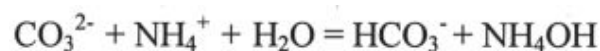
растворимости карбонатов кадмия и серебра имеют один порядок и составляют $\sim 5 \cdot 10^{-12}$

и $8 \cdot 10^{-12}$. Устойчивость аммиачных комплексов серебра почти на порядок выше устойчивости соответствующих комплексов кадмия. Очевидно, что распределение серебра и кадмия между осадком карбонатов и раствором зависит от соотношения концентраций ионов металлов, ионов аммония, карбонат-ионов и

комплексобразователя-аммиака. Для качественного разделения серебра и кадмия необходимо определить условия, в которых кадмий бы полностью находился в карбонатном осадке, а серебро находилось бы в растворе в виде аммиачного комплекса. Очевидно, что минимальная концентрация аммиака должна быть достаточна для образования соответствующих растворимых комплексных аммиачных солей серебра и кадмия. Максимальная концентрация аммиака должна ограничиваться не менее чем 95% осаждением карбоната кадмия.

Для опытов использовали нитраты серебра и кадмия, меченые радиоактивными изотопами $^{110\text{m}}\text{Ag}$ и ^{109}Cd . Массовые концентрации серебра и кадмия задавались растворением навесок известной массы.

Следует отметить, что концентрацию аммиака в системе $\text{NH}_4\text{OH}-\text{NH}_4\text{NO}_3-\text{K}_2\text{CO}_3$ можно поддерживать не только введением заданного количества гидроксида аммония, но и введением заданного количества NH_4NO_3 . В этом случае гидроксид аммония образуется по реакции



Концентрации $[\text{NH}_4\text{NO}_3] \geq 0,1$ моль/л и $0,2 \leq [\text{NH}_4\text{OH}] \leq 0,8$ моль/л подбирались экспериментально при проведении очистки кадмия от серебра в системе $\text{NH}_4\text{OH}-\text{NH}_4\text{NO}_3-0,3$ моль/л K_2CO_3 при различных соотношениях аммиака и нитрата аммония.

Таблица 1

C(NH ₄ OH) , моль/л	C(NH ₄ NO ₃) моль/л						
	0	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
0	1	14	27	37	16	16	19
0,1	1	39	30	26	97	100	101
0,2	50	37	175	245	321	420	539
0,3	198	40	98	198	400	540	675
0,4	340	50	210	415	470	725	1008
0,5	456	61	300	610	617	800	1008
0,6	500	84	300	600	860	1120	1400
0,7	510	110	300	600	1190	1550	1880
0,8	536	132	350	715	1537	1960	2342
0,9	680	128	450	1000	2250	2630	2700
1	813	136	600	1350	3102	3100	3047

Как видно из данных табл. 1, при концентрации NH₄NO₃ < 0,1 моль/л и концентрации NH₄OH < 0,2 моль/л очистки кадмия от серебра не происходит. В остальной области, соответствующей [NH₄NO₃] ≥ 0,1 моль/л и [NH₄OH] ≥ 0,2 моль/л, коэффициенты очистки равны 14-3000.

На прилагаемом рисунке приведена зависимость степени осаждения карбоната кадмия от концентрации гидроксида аммония при различных концентрациях нитрата аммония. Как видно, при концентрации нитрата аммония 0-0,6 моль/л для достижения степени осаждения кадмия не менее 95%, концентрация аммиака не должна превышать 0,8 моль/л.

50 мл раствора нитратов кадмия и серебра в 12 моль/л HNO₃, содержащего 0,1 моль/л кадмия и 0,05 моль/л серебра (мольное содержание Ag в смеси - 33,3%), упарили до влажных солей и растворили в 50 мл раствора, содержащего 0,6 моль/л NH₄NO₃ и 0,6 моль/л NH₄OH. Добавили 2 моль/л раствора карбоната калия до концентрации 0,3 моль/л. Раствор перемешали и выдержали 24 часа. Осадок основного карбоната кадмия отделили от маточного раствора, промыли 3 раза по 20 мл дистиллированной воды и растворили в 20 мл 4 моль/л азотной кислоты. Результаты разделения приведены в таблице 2.

Таблица 2

Фракция	Кадмий		Серебро	
	мг	%	мг	%
Исходный раствор	562	100	270	100
Маточный раствор + промывки	12	2,1	269,8	99,92
Осадок основного карбоната кадмия	550	97,9	0,23	0,085
Мольное содержание Ag в Cd в осадке - 0,042%				
Коэффициент очистки кадмия от серебра - 800				

Формула изобретения

Способ выделения радионуклида кадмий-109 раствора, содержащего радионуклиды кадмия и серебра, заключающийся в растворении облученного серебра в азотной кислоте, упаривании до влажных солей полученного раствора, растворении образовавшихся нитратов и осаждении основного карбоната кадмия избытком осадителя, отличающийся тем, что осаждение основного карбоната кадмия проводят в присутствии нитрата и гидроксида аммония с концентрациями: $[\text{NH}_4\text{NO}_3] \geq 0,1$ моль/л и $0,2 \leq [\text{NH}_4\text{OH}] \leq 0,8$ моль/л, а в качестве осадителя используют раствор карбоната или гидрокарбоната натрия или калия.

