



(11)

EP 3 475 954 B1

(12)

FASCICULE DE BREVET EUROPEEN

(45) Date de publication et mention de la délivrance du brevet:

10.06.2020 Bulletin 2020/24

(51) Int Cl.:

G21G 1/00 (2006.01)

(86) Numéro de dépôt international:

PCT/EP2017/065974

(21) Numéro de dépôt: **17732470.4**

(22) Date de dépôt: **28.06.2017**

(87) Numéro de publication internationale:

WO 2018/002127 (04.01.2018 Gazette 2018/01)

(54) **PROCÉDÉ DE PRODUCTION D'UNE FRACTION DE RADIO-ISOTOPES D'IODE, EN PARTICULIER D'I-131, FRACTION DE RADIO-ISOTOPES D'IODE, EN PARTICULIER D'I-131**

VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINER IOD-RADIOISOTOPENFRAKTION, INSBESONDERE VON I-131, IOD-RADIOISOTOPENFRAKTION, INSBESONDERE I-131

METHOD FOR PRODUCING AN IODINE RADIOISOTOPES FRACTION, IN PARTICULAR OF I-131, IODINE RADIOISOTOPES FRACTION, IN PARTICULAR OF I-131

(84) Etats contractants désignés:

AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC MK MT NL NO PL PT RO RS SE SI SK SM TR

(74) Mandataire: **Gevers Patents**

**Intellectual Property House
Holidaystraat 5
1831 Diegem (BE)**

(30) Priorité: **28.06.2016 BE 201605495**

(43) Date de publication de la demande:

01.05.2019 Bulletin 2019/18

(56) Documents cités:

- **MUSHTAQ ET AL: "Preparation and characterization of silver coated alumina for isolation of iodine-131 from fission_products", J. ENG. MANUF. TECHNOL., 8 août 2014 (2014-08-08), XP055345623, cité dans la demande**
- **SALACZ J: "Reprocessing of irradiated Uranium 235 for the production of Mo-99, I-131, Xe-133 radioisotopes", REVUE IRE TIJDSCHRIFT, vol. 9, no. 3, 1 janvier 1985 (1985-01-01), XP009192749, cité dans la demande**
- **Oak Ridge Tennessee: "Production of Fission Product Iodine 131", , 18 décembre 1951 (1951-12-18), XP055342506, Extrait de l'Internet: URL: <http://web.ornl.gov/info/reports/1951/3445603527565.pdf> [extrait le 2017-02-06]**

(73) Titulaire: **Institut National Des Radioéléments
6220 Fleurus (BE)**

(72) Inventeurs:

- **MOYAUX, Dominique
1490 Court-Saint-Etienne (BE)**
- **HOST, Valery
5350 Ohey (BE)**
- **DECAMP, Caroline
1325 Longueville (BE)**

Il est rappelé que: Dans un délai de neuf mois à compter de la publication de la mention de la délivrance du brevet européen au Bulletin européen des brevets, toute personne peut faire opposition à ce brevet auprès de l'Office européen des brevets, conformément au règlement d'exécution. L'opposition n'est réputée formée qu'après le paiement de la taxe d'opposition. (Art. 99(1) Convention sur le brevet européen).

EP 3 475 954 B1

Description

[0001] La présente invention se rapporte à un procédé de production d'une fraction de radio-isotopes d'iode, en particulier d'I-131, comprenant les étapes de :

- (i) Dissolution basique de cibles d'uranium enrichi avec obtention d'une bouillie basique contenant des sels d'aluminium, de l'uranium et des isotopes issus de la fission de l'uranium enrichi et d'une phase gazeuse de Xe-133,
- (ii) Filtration de ladite bouillie basique afin d'isoler d'une part une phase solide contenant l'uranium et d'autre part une solution basique de molybdate et des sels de radio-isotopes d'iode,
- (iii) Adsorption desdits sels de radio-isotopes d'iode sur une résine d'alumine dopée à l'argent et récupération de ladite solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent, et
- (iv) Récupération de ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131.

[0002] Un tel procédé est bien connu et décrit dans le document « Preparation and characterization of silver coated alumina for isolation of iodine-131 from fission products. Mushtaq et al. - Journal of Engineering and Manufacturing Technology, 2014".

[0003] Selon ce document, des cibles d'uranium hautement enrichi sont traitées en vue de produire des radio-isotopes de Molybdène-99 et des radio-isotopes de l'iode-131 par dissolution basique. Comme mentionné précédemment, la bouillie basique est ensuite filtrée et la phase liquide basique (le filtrat) est chargé sur une résine d'alumine dopée à l'argent.

[0004] Une fraction contenant des radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 est récupérée par élution de la colonne d'alumine dopée à l'argent par du thiosulfate de sodium ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$). Selon ce document la fraction récoltée contenant les radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 n'est pas suffisamment pure et doit encore être distillée pour une utilisation médicale. L'élution au thiosulfate de sodium permet de collecter environ 90 % de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 chargés sur la colonne d'alumine dopée à l'argent.

[0005] Malheureusement, ce document est muet quant au rendement total de purification. En effet, bien que détaillant les rendements d'élution par rapport à la quantité d'iode chargée sur la colonne, ce document ne donne aucune information sur le rendement de purification de l'iode par rapport à la solution basique issue de la dissolution de cibles.

[0006] Un autre procédé de production de fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 est décrit dans le document « Reprocessing of irradiated Uranium 235 for the production of Mo-99, I-131, Xe-133

radioisotopes. J. Salacz - revue IRE tijdschrift, vol 9, N°3 (1985) ».

[0007] Selon ce document, le traitement de produits de fission de l'uranium dans le but de produire des radio-isotopes de courte durée de vie implique des conditions de travail particulièrement contraignantes.

[0008] Ces conditions de travail particulièrement contraignantes impliquent entre autres de travailler dans des cellules blindées et à l'aide de pinces robotisées ou manipulées de l'extérieur de cellules blindées par les manipulateurs de la chaîne de production. Une fois les processus de traitement des cibles contenant de l'uranium hautement enrichi bien établis et sécurisés en ce que la pollution de l'environnement est nul ou très faible, le processus de production des radio-isotopes est clairement figé. La moindre modification de ces procédés est évitée dans la mesure du possible pour éviter de perturber le schéma de production, dans la mesure ou lorsque le niveau de pollution de l'environnement est considéré comme sécurisé, chaque modification est considérée comme un nouveau risque à gérer dans le but d'obtenir un nouveau design satisfaisant les contraintes environnementales. De plus, le procédé est réalisé dans des cellules comprenant des hublots de verre blindé au plomb de plusieurs dizaine de cm et au travers desquelles les cellules passent des bras articulés manipulés de l'extérieur, robotisés ou non.

[0009] Plusieurs cellules se suivent. Dans chaque cellule, une partie du procédé est réalisée.

[0010] Une première cellule est dédiée à la dissolution de cibles d'uranium hautement enrichi. Une fois la phase liquide contenant les produits de fission solubles de l'uranium récupérée par filtration, dont le radio-isotope de Mo-99, elle est transférée dans une deuxième cellule dans laquelle elle est acidifiée pour permettre, durant l'étape d'acidification exothermique, un dégagement de l'iode sous forme de gaz.

[0011] La solution de laquelle l'iode se dégage est chauffée et agitée par bullage pour favoriser le dégagement de l'iode sous forme de gaz. Le gaz contenant les radio-isotopes de l'iode est ainsi capturé au moyen d'un piège d'amiante platinée. Les radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sont ensuite désorbés du piège d'amiante platinée et envoyés dans la cellule pour y subir une purification chimique par distillation.

[0012] Les rendements de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 décrits dans ce document sont d'environ 80 à 90 %. 10 à 20% des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 restent dans la phase liquide acidifiée et contaminent les autres radio-isotopes.

[0013] Ainsi selon ce document, la sélectivité de l'isolement de l'iode pour sa production n'est pas optimale. De plus, durant l'acidification exothermique, bien que la température de la phase liquide acidifiée augmente, il est encore nécessaire d'amener un chauffage additionnel et une agitation par bullage pour tenter de récupérer les radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 au maximum.

[0014] Ce chauffage entraîne une évaporation de nitrates issus de l'acidification qui a lieu à l'acide nitrique, lequel contamine les radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz, ce qui est problématique car il interfère avec les processus de marquage de molécules biologiques ultérieurs.

[0015] Il existe donc un besoin de procurer un procédé permettant de produire de l'iode à meilleur rendement, en réduisant les risques environnementaux en sécurisant et en réduisant tout échappement potentiel d'iode dans le système de ventilation, mais aussi dans lequel la sélectivité de la production est améliorée pour augmenter la pureté des fractions de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'I-131.

[0016] L'invention a pour but de pallier aux inconvénients de l'état de la technique en procurant un procédé permettant d'améliorer la pureté de l'iode produit en agissant sur la sélectivité des opérations de production tout en réduisant les risques environnementaux.

[0017] Pour résoudre ce problème, il est prévu suivant l'invention un procédé tel qu'indiqué au début dans lequel ladite récupération de ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 comprend un lavage de la résine d'alumine dopée à l'argent par une solution de NaOH à une concentration comprise entre 0,01 et 0,1 mol/l, de préférence entre 0,03 et 0,07 mol/l et de manière plus préférentielle d'environ 0,05 mol/l et une élution de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 par une solution de thio-urée présentant une concentration en thio-urée comprise entre 0,5 mol/l et 1,5 mol/l, de préférence comprise entre 0,8 et 1,2 mol/l, plus préférentiellement aux environs de 1 mol/l avec une collecte d'un éluat contenant lesdits radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de thio-urée.

[0018] En réalisant cette étape de fixation sur une colonne d'alumine dopée à l'argent, environ 90% des radio-isotopes d'iode contenu dans solution basique de molybdate et des sels de radio-isotopes d'iode sont fixés sur la résine d'alumine dopée à l'argent.

[0019] Selon la présente invention, la colonne d'alumine est fabriquée suivant l'enseignement du document « Preparation and characterization of silver coated alumina for isolation of iodine-131 from fission products. Mushtaq et al. - Journal of Engineering and Manufacturing Technology, 2014 », à l'exception du fait que l'argent est réduit par de l'hydrazine au lieu de sulfate de sodium.

[0020] Le taux d'imprégnation de la résine d'alumine par l'argent est d'au moins 4, de préférence d'au moins 5, de manière préférentielle d'environ 5,5 % en poids d'argent par rapport au poids total de l'alumine non dopée.

[0021] En pratiquant une élution à l'aide de thio-urée selon la présente invention, il est apparu de manière surprenante que le taux de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 élué par rapport à la teneur totale de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 chargé sur la colonne d'alumine était supérieur à 90%, voire d'environ 95 % en activité.

[0022] De plus l'élution à l'aide de thio-urée est plus rapide permettant d'atteindre un pic d'élution plus étroit augmentant de cette manière la sélectivité de la purification des radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131, en évitant au maximum la présence d'autres radio-isotopes dans l'éluat de la colonne d'alumine dopée à l'argent. De plus, Selon la présente invention, le volume de solution de lavage est prévu de manière à être optimisé et suffisamment retardé par rapport au passage du molybdène au travers de la colonne, comme par exemple la présence de radio-isotopes de Mo-99, qui autrement contaminerait l'éluat de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131, mais pas trop pour éviter la perte de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131.

[0023] Par conséquent, dans le procédé selon la présente invention, la sélectivité de la récupération de l'iode est améliorée, en particulier de l'iode-131, mais également la sécurité environnementale, par l'adsorption des radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 sur une résine d'alumine dopée à l'argent, plutôt que de devoir impérativement passer la quantité totale de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 de la solution basique de molybdate et des sels de radio-isotopes d'iode en phase gazeuse pour récupérer la totalité des radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 via un piège à gaz.

[0024] Dans une forme de réalisation avantageuse, lesdites cibles d'uranium sont des cibles d'uranium faiblement enrichi.

[0025] Bien que le procédé selon la présente invention s'applique à tout type de cibles, en particulier aux cibles d'uranium hautement enrichi, mais aussi faiblement enrichi, la forme de réalisation à partir de cibles d'uranium faiblement enrichi est préférée.

[0026] En effet, la production de radio-isotopes à usage médical était depuis longtemps effectuée à partir d'uranium hautement enrichi.

[0027] L'uranium hautement enrichi (HEU) est un défi dans les considérations de sécurité mondiale dû à sa relative vulnérabilité vis-à-vis des groupes terroristes et son potentiel de développement de l'arme nucléaire. Bien que les nombreuses installations produisant des radio-isotopes à usage médical possèdent de solides mesures de sécurité, la minimisation de l'utilisation d'uranium hautement enrichi à usage civil est une action importante afin de réduire le risque de prolifération.

[0028] En dépit de la plus grande efficacité de production de radio-isotopes à partir du HEU, tant au niveau économique qu'écologique, la conversion du procédé de production des radio-isotopes à partir du HEU est fortement contraint par les USA, source principale d'uranium de la matière première. Les Etats-Unis viennent de prendre toutes les mesures nécessaires pour promouvoir l'utilisation du LEU par des mesures compensatoires à l'utilisation des radio-isotopes produits à partir d'uranium faiblement enrichi (LEU), par l'introduction de limitations à l'achat et à la livraison de HEU, ou encore par des pénalités à l'utilisation du Mo-99 produit à partir de HEU.

[0029] C'est dans ce contexte qu'il existe donc un besoin de mettre au point un procédé permettant de produire des fractions contenant un radio-isotope de I-131 pur qui permet d'atteindre un compromis satisfaisant entre la rentabilité économique du procédé de production, mais également la réduction de l'utilisation d'uranium hautement enrichi.

[0030] Malheureusement, étant donné que la quantité de radio-isotope est directement liée à la quantité d'uranium-235 fissile, et afin de garantir le même niveau d'approvisionnement en isotope médical I-131 pur, les cibles à base d'uranium faiblement enrichi contiennent globalement bien plus d'uranium que les cibles à base d'uranium hautement enrichi et contiennent donc sensiblement plus de matière inutilisable (jusqu'à 5 fois plus).

[0031] Il est donc avantageux selon la présente invention de pouvoir traiter dans le procédé des cibles d'uranium faiblement enrichi, malgré la présence de contaminants bien différents de ceux issus de cibles d'uranium hautement enrichi, mais qui augmente la sécurité environnementale, tout en maintenant/améliorant la pureté en jouant sur la sélectivité vis-à-vis de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 ainsi qu'en maintenant les critères qualitatifs des fractions de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131.

[0032] Avantageusement, selon la présente invention, le procédé comprend en outre, avant ladite filtration une addition de nitrate d'alcalino-terreux, plus particulièrement de strontium, de calcium, de baryum, de préférence de baryum et de carbonate de sodium à ladite bouillie basique.

[0033] En effet, selon la présente invention, il a été possible de réaliser un procédé exploitable industriellement, en optimisant la sélectivité de la production de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 dans des rendements acceptables et dont la sécurité environnementale est améliorée, et dans lequel également, malgré la présence de 5 fois plus de matière non utilisable, la production de radio-isotope de Mo-99 permet d'atteindre la pureté requise à une utilisation médicale, mais qui, au-delà, améliore la sécurité environnementale (tant pour l'environnement que pour les manipulateurs).

[0034] Il a été mis en évidence dans le procédé selon la présente invention que la dissolution basique des cibles qui génère une bouillie beaucoup plus concentrée en matière solide non utilisable, mais aussi en contaminant de la partie liquide de la bouillie pouvait être filtrée de manière efficace par l'ajout de nitrate d'alcalino-terreux, plus particulièrement de strontium, de calcium, de baryum, de préférence de baryum et de carbonate de sodium. En effet, lorsque le nitrate d'alcalino-terreux, plus particulièrement de strontium, de calcium, de baryum, de préférence de baryum est ajouté à la bouillie, ainsi que le carbonate de sodium, il y a formation de carbonate carbonates insolubles, comme par exemple de baryum, mais aussi de strontium et autres carbonates qui servent de milieu filtrant au moment de la filtration et empêche ainsi le colmatage des pores du filtre en fibre

de verre. Ceci a permis d'atteindre une réduction significative du temps de filtration. Selon la présente invention, le temps de filtration de la bouillie a été réduit de 4 et 6 heures à une durée réduite comprise entre 30 minutes et deux heures, en fonction du nombre de cibles engagées dans la dissolution. Ceci est pourtant déjà significativement élevé par rapport à un procédé utilisant des cibles à base d'uranium hautement enrichi (temps de filtration typiquement entre 10 et 20 minutes), mais représente une possibilité d'exploitation industrielle, qui autrement, n'aurait pas existé sans augmenter trop significativement le prix de production des radio-isotopes issus de la fission de l'uranium 235.

[0035] Avec les cibles à base d'uranium faiblement enrichi, la teneur en phase solide dans la bouillie est 5 fois plus élevée. De plus, typiquement, ces cibles sont à base d'alliage d'aluminium et d'uranium, en particulier sous forme d'UAl₂, bien que d'autres formes d'alliage soient également présentes (comme UAl₃, UAl₄, ...). Les cibles à base d'uranium faiblement enrichi contiennent moins de 20% en poids d'uranium 235 par rapport au poids total d'uranium présent dans la cible. Les cibles à base d'uranium hautement enrichi contiennent plus de 90% en poids d'uranium 235 par rapport au poids total d'uranium présent dans la cible. Par conséquent, la teneur en uranium enrichi est proportionnellement et significativement diminuée (d'un facteur environ 5).

[0036] En outre, le fait de travailler à partir d'alliage, entre autres d'UAl₂ permet d'augmenter la densité en uranium présent dans la cible, ce qui permet d'améliorer clairement le rendement de production, mais apporte également d'autres impuretés, telles que par exemple du magnésium, qui perturbent le procédé de production de radio-isotopes de Mo-99 pour une utilisation médicale. En effet, l'augmentation de la densité uranium du noyau uranifère a imposé le remplacement de l'aluminium A5 pur par un alliage plus dur. En effet, avec cette augmentation de densité, en cas d'utilisation de A5 pur, l'intégrité des cibles (et leur non déformation) au cours de leur production ne serait pas garantie. Ce n'est donc pas l'utilisation d'UAl₂ qui apporte du Mg comme impureté, mais le fait que l'alliage d'uranium UAl₂ soit plus dense et que la quantité totale d'uranium ait augmenté, ce qui a nécessité l'emploi d'alliage d'aluminium pour la fabrication des cibles, lequel renferme le Mg.

[0037] Par conséquent, dans le procédé selon la présente invention, bien que la teneur en déchets hautement radioactif soit augmentée, il a été possible d'une part de filtrer la bouillie en un temps exploitable industriellement, mais également d'éliminer les impuretés amenées par l'utilisation d'un alliage d'uranium et d'aluminium dans la bouillie.

[0038] En particulier, dans le procédé selon la présente invention, la contamination de la fraction de radio-isotope de Mo-99 par le radio-isotope Sr-90 est réduite car il précipite avec le carbonate amené dans la bouillie. Ceci revêt une importance considérable dans la mesure où la radio-toxicité du radio-isotope Sr-90 est fort élevée par

la combinaison de sa longue période physique (période radioactive : 28,8 ans), son rayonnement beta de haute énergie et à sa longue période biologique (tropisme osseux). Il est donc très important de réduire cette impureté pour minimiser les effets secondaires potentiels à long terme chez le patient.

[0039] De plus, bien que relativement essentiel, l'adjuvant de filtration utilisé dans le procédé selon la présente invention ne perturbe pas la fixation de l'iode sur la colonne d'alumine argentée, au contraire, étant donné la présence déjà réduite de contaminants à la source, il ressort de la présente invention qu'il est possible de produire de manière efficace et rentable d'une part un radio-isotope de Mo-99 à partir d'uranium faiblement enrichi, sans que la fraction de radio-isotope soit finalement moins pure, répondant de cette manière toujours aux critères de la pharmacopée européenne, malgré la présence massive d'une quantité bien plus importante de déchets mais aussi de contaminants plus complexes à éliminer, comme par exemple le magnésium, mais aussi dans lequel le risque de présence de strontium dans la fraction de radio-isotope de Mo-99 est fortement diminué, mais dans lequel environ 90% de l'iode présent dans la bouillie basique est collecté sur cette colonne d'alumine dopée à l'argent après la filtration d'autre part.

[0040] Dans une première forme de réalisation avantageuse du procédé selon la présente invention, le procédé comprend également une acidification dudit éluat contenant lesdits de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de thio-urée par addition d'une solution tampon, en particulier d'une solution d'acide phosphorique à une concentration comprise entre 0,5 et 2 mol/l, de préférence comprise entre 0,8 et 1,5, et de manière plus préférentielle d'environ 1 mol/l avec une récupération d'une solution acidifiée de sels de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131.

[0041] Selon la présente invention, les radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 est acidifié dans le but d'être pré-purifié et séparé de la majorité des contaminants, dont la thio-urée, utilisée préalablement pour récupérer l'iode de l'alumine argentée.

[0042] Dans le cadre de la présente invention, par le terme « effluent de la résine » on entend la phase mobile qui passe au travers de la résine et qui quitte la colonne chromatographique.

[0043] Dans un mode préféré de la présente invention, le procédé comprend en outre une purification de ladite solution acidifiée de sels de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131, ladite purification comprenant un chargement de ladite solution acidifiée de sels de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 sur une colonne échangeuse d'ions, un lavage de ladite résine échangeuse d'ions à l'aide d'eau, une élution de ladite résine échangeuse d'ions à l'aide de NaOH à une concentration comprise entre 0,5 et 2,5 mol/l, de préférence comprise entre 0,8 mol/l et 1,5 mol/l et de manière particulièrement préférentielle d'environ 1 mol/l avec une récupération de ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier

d'I-131 dans une solution de NaOH.

[0044] Avantageusement, ladite résine échangeuse d'ions est une résine anionique faible.

[0045] Dans une variante du procédé selon la présente invention, le procédé comprend également une acidification de la solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent, avec formation d'une solution acide de sels de molybdène et dégagement de radio-isotopes résiduels de l'iode, en particulier I-131, sous forme de gaz en vue de sa récupération.

[0046] Dans cette variante du procédé selon la présente invention, comme mentionné plus haut, la quantité de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 qui est récupérée par adsorption sur la colonne d'alumine dopée à l'argent est d'environ 90% en activité par rapport à l'activité totale de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131. Les 10% résiduels de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 sont encore présents dans la solution basique de molybdate préalablement passée au travers de ladite colonne d'alumine dopée à l'argent. Par conséquent récupérer dans une étape séparée l'iode résiduel s'avère avantageux pour deux raisons. Tout d'abord l'iode ainsi récupéré peut être valorisé sous forme de fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131, mais également parce que la présence d'iode résiduel dans la solution basique de molybdate représente un risque environnemental de voir ces radio-isotopes de l'iode, en particulier de l'iode-131 s'échapper dans le système de ventilation, lequel est également connecté à la cheminée.

[0047] Par conséquent isoler l'iode à ce stade représente un potentiel de rentabilité dans le cadre du procédé selon la présente invention, mais contribue également à diminuer le risque environnemental lié à l'iode dans le procédé selon la présente invention.

[0048] De préférence, dans une autre forme avantageuse du procédé selon la présente invention, le procédé comprend en outre, avant ladite acidification de la solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent, un refroidissement de la solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent jusqu'à une température inférieure ou égale à 60°C, de préférence inférieure ou égale à 55°C, plus particulièrement, inférieure ou égale à 50°C.

[0049] De cette manière, il a été observé de manière surprenante que la pureté et le rendement des fractions de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 produites étaient améliorés.

[0050] Selon la présente invention, il a été mis en évidence que pour résoudre ce problème lié à la difficulté de contrôler le dégagement massif de l'iode à température élevée, le fait de refroidir simplement la phase aqueuse basique issue de la filtration avant acidification

jusqu'à une température inférieure ou égale à 60°C, de préférence inférieure ou égale à 55°C, plus particulièrement, inférieure ou égale à 50°C permettait de favoriser la solubilité de l'iode dans la solution acide de sels de molybdène. De cette façon, puisque la solubilité des gaz diminue avec l'augmentation de la température, le refroidissement de la solution aqueuse basique issue de la filtration permet une volatilisation moins rapide de l'iode et donc évite sa libération de façon brutale au moment de l'ajout d'acide. En effet, lorsque l'iode est amenée au piège à iode de manière brutale, la capture de l'iode est impactée négativement, alors que le refroidissement qui permet une libération contrôlée améliore le rendement de capture par le piège.

[0051] Durant l'acidification, la température de la solution acide de sels de molybdène augmente progressivement et permet une libération également progressive de l'iode vers le piège, ce qui favorise sa capture, contrairement au dégagement massif de l'iode.

[0052] Par conséquent, selon la présente invention, il est possible d'améliorer le rendement de production de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 à partir de cibles d'aluminium contenant de l'uranium hautement enrichi de manière très simple par simple refroidissement du filtrat en vue d'éviter l'arrivée massive d'iode dans le piège à iode durant l'acidification à une température d'environ 50°C et dans tous les cas inférieure à 60°C. Le filtrat est donc acidifié par de l'acide nitrique concentré. Les radio-isotopes de l'iode sont alors dégagés durant l'acidification en quantité bien plus importante.

[0053] Dans une forme particulière de réalisation selon la présente invention, le procédé comprend en outre, après acidification, un chauffage de la solution acide de sels de molybdène à température supérieure à 93°C, de préférence supérieure ou égale à 95°C, de préférence entre 96°C et 99°C, mais de préférence inférieure à 100°C, accompagné d'un bullage d'air afin d'optimiser le dégagement d'iode sous forme gazeux, à un moment bien déterminé, pendant et après acidification.

[0054] Avantagusement, dans le procédé selon la présente invention, ladite récupération des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 lors de son dégagement est réalisé par un transfert des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz dans une tubulure reliée à une extrémité à un acidificateur dans lequel a lieu l'acidification et à une autre extrémité à un récipient fermé contenant une phase aqueuse et un milieu environnant, ledit transfert des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz étant réalisé de manière à aboutir directement dans la phase aqueuse dans laquelle les radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz passent au travers de la phase aqueuse et s'échappent sous forme de bulles vers le milieu environnant de la phase aqueuse, contenu dans le récipient fermé.

[0055] De cette façon, les nitrates éventuellement présents sous forme d'aérosols, ainsi que d'autres espèces gazeuses solubles dans l'eau, comme les oxydes d'azo-

te, sont solubilisées et éliminées des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz.

[0056] Dans encore une autre variante avantageuse de la présente invention, ledit récipient fermé est relié par une tubulure à un deuxième récipient fermé qui contient un piège au NaOH et dans lequel le milieu environnant de la phase aqueuse est transféré du récipient fermé au deuxième récipient fermé contenant le piège au NaOH sous forme de solution à une concentration de 2 à 4, en particulier d'environ 3 mol/l, avec déchargement du milieu environnant contenant les radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 de la tubulure dans la solution du piège au NaOH, avec solubilisation des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz en iodure de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 dans la solution aqueuse du piège au NaOH.

[0057] Les radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sont ainsi dissous dans la solution aqueuse de NaOH à une concentration en NaOH de 2 à 4 mol/l, de préférence de 3 mol/l et forme une solution brute d'iode.

[0058] Dans un mode préféré du procédé selon la présente invention, la solution aqueuse du piège au NaOH contenant les iodures de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131, forme une solution brute d'iode, laquelle est ensuite purifiée par une deuxième acidification pour former de l'iode gazeux. La solution brute est transférée dans une cellule de purification de l'iode. La solution brute est ensuite acidifiée par $H_2SO_4 + H_2O_2$ pour produire à nouveau de l'iode gazeux, lequel est capturé dans des barboteurs NaOH 0,2 M. Cette solution est appelée « solution mère » et elle est ensuite conditionnée dans des flacons étanches, selon les commandes.

[0059] Alternativement, la fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de NaOH contenant des iodures de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131, forme une solution brute d'iode et est ensuite purifiée par une deuxième acidification, de préférence réalisée en présence de H_2SO_4 et H_2O_2 , pour produire à nouveau de l'iode gazeux. Ensuite, préférentiellement, l'iode gazeux est capturé dans des barboteurs NaOH 0,2 M pour former ladite fraction contenant un radio-isotope d'iode 131.

[0060] Dans une variante avantageuse, ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de NaOH et la solution aqueuse du piège au NaOH contenant les iodures de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131, sont rassemblées et purifiées ensemble par une deuxième acidification.

[0061] D'autres formes de réalisation du procédé suivant l'invention sont indiquées dans les revendications annexées.

[0062] L'invention a aussi pour objet une fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 conditionnée dans une solution de NaOH présentant une pureté radiochimique en radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 supérieure à 97%, de préférence d'au moins 98%, plus particulièrement d'au moins 98,5 % de l'activité présente sous la forme chimique iodure dudit radio-iso-

tope du I-131 par rapport à l'activité totale dudit radio-isotope du I-131 sous toutes ses formes dans ladite fraction.

[0063] Plus particulièrement, ladite solution de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 est conditionnée dans des flacons étanches, lesdits flacons étanches étant enfermés dans des conteneurs individuels blindés.

[0064] Avantagusement, la fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 présente une teneur en nitrate inférieure à 30 g/l.

[0065] Dans une variante avantageuse, la fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 est obtenue par le procédé selon la présente invention.

[0066] D'autres formes de réalisation de la fraction suivant l'invention sont indiquées dans les revendications annexées.

[0067] D'autres caractéristiques, détails et avantages de l'invention ressortiront de la description donnée ci-après, à titre non limitatif et en faisant référence aux exemples.

[0068] Lorsque de l'uranium 235 est bombardé de neutrons, il forme des produits de fission ayant une masse inférieure et qui sont eux-mêmes instables. Ces produits génèrent via un cycle de désintégration d'autres radio-isotopes. C'est notamment de cette manière que sont produits les radio-isotopes Mo-99, Xe-133 et I-131.

[0069] Les cibles à base d'uranium faiblement enrichi contiennent un alliage d'aluminium contenant de l'uranium. La teneur en uranium enrichi par rapport au poids total d'uranium est de maximum 20%, et typiquement autour de 19%. Les cibles d'uranium faiblement enrichi sont dissoutes durant une phase de dissolution basique en présence de NaOH (aux environ de 4 mol/l ou plus) et de NaNO_3 (aux environ de 3,5 mol/l). Durant la dissolution, une bouillie est formée ainsi qu'une phase gazeuse de Xe-133. La bouillie contient une phase solide principalement formée d'uranium et d'hydroxydes de produits de fission et une phase liquide de molybdate (MoO_4^-) et d'iode 131 sous de sels d'iode.

[0070] Le volume de phase de dissolution basique augmente avec le nombre de cible étant donné la teneur très importante en produit non utilisable après dissolution des cibles. La dissolution de l'aluminium de la cible est une réaction exothermique.

[0071] La phase gazeuse de Xénon est récupérée par captage au moyen d'un piège à Xénon.

[0072] Lorsque le Xénon est éliminé, une solution de nitrate d'alcalino-terreux, plus particulièrement de strontium, de calcium, de baryum, de préférence de baryum est ensuite ajoutée à la bouillie à une concentration comprise entre 0,05 mol/l et 0,2 mol/l et à hauteur d'un volume de 2 à 6 litres en fonction du nombre de cibles. Du carbonate de sodium est également ajouté à une concentration comprise entre 1 mol/l et 1,5 mol/l, de préférence d'environ 1,2 mol/l à hauteur de 100 à 300 ml en fonction du nombre de cibles dissoute.

[0073] La bouillie est ensuite diluée avec de l'eau à hauteur d'un volume de 2 à 6 litres en fonction du nombre

de cible pour permettre son transfert vers l'étape ultérieure.

[0074] La bouillie contenant la phase solide et la phase liquide basique est alors filtrée au moyen d'un filtre de fibres de verre dont la porosité est comprise entre 2 et 4 μm , de préférence autour de 3 μm .

[0075] La phase solide est lavée deux fois avec un volume d'eau de 900 ml, récupérée et éventuellement renvoyée en amont du procédé pour une dissolution basique subséquente. Le filtrat (phase liquide basique récupérée contenant les produits de fission Mo-99, I-131, I-133, I-135, Cs-137, Ru-103, Sb-125 et Sb-127) mais aussi de l'aluminate formé par la dissolution basique des cibles d'aluminium, lequel est soluble à pH basique. L'aluminium est soluble en milieu basique ainsi qu'en milieu acide. Par contre, il est insoluble lorsque le pH est compris entre 5 à 10.

[0076] A ce stade, le filtrat est chargé sur une colonne d'alumine dopée à l'argent afin d'y fixer l'iode et de récupérer un filtrat basique appauvri en iode 131. La colonne d'alumine dopée à l'argent est lavée à l'aide d'un volume d'environ 500 ml de soude caustique à une teneur d'environ 0,05 mol/l. Le taux d'imprégnation de la résine d'alumine contenue dans la colonne d'alumine est d'environ 5,5 % en poids. L'iode se fixe sélectivement par réaction avec le dopage à l'argent présent en surface de l'alumine pour former un iodure d'argent insoluble. La colonne d'alumine dopée à l'argent est de préférence positionnée entre deux réacteurs. Le réacteur en aval de la colonne d'alumine dopée à l'argent est mis sous vide régulé, ce qui permet le transfert du liquide sur la colonne à un débit d'environ 250 ml/min.

[0077] Les rendements de capture d'iode sont d'environ 95%.

[0078] La colonne d'alumine dopée à l'argent est éluée à l'aide d'une solution de thio-urée à une concentration comprise entre 0,5 mol/l et 1,5 mol/l, de préférence aux environ de 1 mol/l. L'éluat contient alors l'iode issu de la colonne. L'éluat est ensuite porté à pH acide à l'aide d'une addition d'un mélange tampon, en particulier d'acide phosphorique afin d'obtenir une solution acide de sels d'iode.

[0079] La solution acide de sels d'iode est ensuite chargée sur une colonne échangeuse d'ions, en particulier sur une colonne de résine anionique faible préalablement conditionnée en milieu acide non-oxydant, en particulier à l'aide d'acide phosphorique. De cette manière en termes de sécurité, dans cette forme de réalisation avantageuse du procédé selon la présente invention, l'activité de l'iode fixé à la résine échangeuse d'ions est transférée d'une cellule à une autre sous forme solide. La colonne échangeuse d'ions sur laquelle l'iode est fixé est ensuite éluée au moyen de NaOH à une concentration comprise entre 0,5 mol/l et 2,5 mol/l, de préférence aux environs de 1.

[0080] Les radio-isotopes de l'iode sont alors transformés en iodure et solubilisés dans le NaOH.

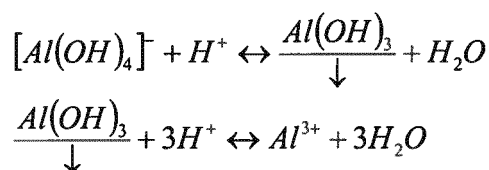
[0081] La fraction contenant les radio-isotopes de l'io-

de subir alors une dernière étape de purification à l'aide de la deuxième acidification.

[0082] Le filtrat collecté doit ensuite être acidifié. Toutefois, l'acidification provoque également un dégagement de chaleur. Par conséquent, avant acidification, le filtrat est refroidi à une température d'environ 50°C. En effet, comme on le sait du document « Form and Stability of Aluminium Hydroxide Complexes in Dilute Solutions (J.D. Hem and C.E. Roberson - Chemistry of Aluminum in Natural Water - 1967), le comportement de l'aluminium en solution est complexe et les réactions de transformation de l'ion Al^{3+} en la forme précipitée d'hydroxyde et la forme soluble aluminat sont soumises à une certaine cinétique.

[0083] La formation de solides métastables est connue et les conditions d'équilibre sont parfois difficiles à atteindre même avec des temps de réaction importants. Les oxydes et hydroxydes d'aluminium forment différentes structures cristallines (bayerite, gibbsite, ...) qui sont chimiquement similaires mais différentes par leur solubilité. Les conditions expérimentales de températures, de concentration et aussi de vitesse d'addition des réactifs influencent fortement les résultats obtenus.

[0084] La réaction qui régit l'équilibre entre les différentes formes de l'aluminium est la suivante au moment de l'acidification



[0085] Comme le milieu est fortement radioactif et à une température élevée à cause de la dissolution basique mais aussi à cause du caractère exothermique de la neutralisation durant l'étape d'acidification, l'addition d'acide formerait à des endroits localisés des surconcentrations en acide entraînant des échauffements locaux par la réaction de neutralisation, et la formation de formes insolubles aluminiques ou à cinétique de re-dissolution lente de sels d'aluminium. Toutefois, vu les contraintes du procédé décrit dans l'état de la technique, le milieu réactionnel présente une température élevée, qu'il est fortement radioactif et peu accessible, il n'est pas possible de le maintenir sous agitation pour éviter ces points de concentration en aluminat à haute température.

[0086] Les effets des surconcentrations en acide doivent être évités pour éviter deux raisons principales. D'une part, la formation de précipités de sels d'aluminium provoque un risque important de colmatage de l'installation, ce qui nuit au rendement de la production, mais également ajoute un risque sanitaire au vu de la forte radioactivité du mélange réactionnel. Il n'est en effet pas simple, voire inenvisageable d'intervenir manuellement pour décolmater l'installation, mais en outre, ce ne pourrait se faire qu'au détriment du rendement de production.

[0087] Par conséquent, le filtrat est refroidi en vue d'éviter la précipitation de sels d'aluminium durant l'acidification à une température d'environ 50°C et dans tous les cas inférieure à 60°C. Le filtrat est donc acidifié par de l'acide nitrique concentré, le filtrat acidifié est chauffé à une température supérieure à 93°C, de préférence supérieure ou égale à 95°C, de préférence entre 96°C et 99°C, mais de préférence inférieure à 100°C et maintenue sous bullage.

[0088] Dans une première variante de la présente invention, l'acidification permet l'obtention d'une solution à pH acide afin de pouvoir fixer le radio-isotope de Mo-99 sur la colonne d'alumine (en présence d'un excès d'acide d'environ 1M).

[0089] La phase liquide acidifiée, appauvrie en iode est alors chargée sur une colonne d'alumine, conditionnée dans de l'acide nitrique 1 mol/l. Le Mo-99 est adsorbé sur l'alumine alors que la majorité des produits de fission contaminants sont éliminés dans l'effluent de la colonne d'alumine.

[0090] La colonne d'alumine sur laquelle le radio-isotope de Mo-99 est fixé est lavée par de l'acide nitrique à une concentration d'une mol/l, par de l'eau, du sulfite de sodium à une concentration d'environ 10 g/l et enfin encore une fois à l'eau. L'effluent de lavage est écarté.

[0091] La colonne d'alumine est ensuite éluée par du NaOH à une concentration d'environ 2 mol/l et ensuite par de l'eau.

[0092] L'éluat récupéré de la colonne d'alumine forme le premier éluat du radio-isotope de Mo-99 sous forme de molybdate.

[0093] Dans un mode préféré du procédé selon la présente invention, le premier éluat de la colonne est conservé pendant une période de temps comprise entre 20 et 48 h. Après cette période de temps prédéterminée, la colonne d'alumine est à nouveau éluée à l'aide de NaOH à une concentration d'environ 2 mol/l et ensuite avec de l'eau avant son nettoyage. L'éluat de la nouvelle élution forme le deuxième éluat du radio-isotope de Mo-99, sous forme de molybdate.

[0094] A ce stade, soit le premier éluat du radio-isotope de Mo-99 est rassemblé avec le deuxième éluat du radio-isotope de Mo-99 et forme un éluat unique qui va encore subir les étapes de purification ultérieure. Soit chaque premier et deuxième éluat est traité séparément dans les étapes de purification ultérieure, de la même manière.

[0095] Pour plus de simplicité, on parlera dans la suite de l'éluat de radio-isotope de Mo-99, qu'il s'agisse du premier éluat du radio-isotope de Mo-99 ou du deuxième éluat du radio-isotope de Mo-99 ou des deux rassemblés.

[0096] L'éluat de radio-isotope de Mo-99 de la colonne d'alumine est alors chargé sur une deuxième colonne chromatographique contenant une résine échangeuse d'ions de type anionique forte préalablement conditionnée dans de l'eau.

[0097] La colonne échangeuse d'ions est ensuite éluée au nitrate au moyen d'une solution de nitrate d'ammonium à une concentration d'environ 1 mol/l. L'éluat

récupéré comprend donc le radio-isotope de Mo-99 dans une fraction contenant du nitrate d'ammonium.

[0098] La solution de nitrate d'ammonium contenant le radio-isotope de Mo-99 est alors chargée sur une colonne de charbon actif 35-50 mesh, qui peut être éventuellement dopé à l'argent pour récupérer les éventuelles traces d'iode. La colonne de charbon actif sur laquelle le radio-isotope de Mo-99 est fixé est alors lavée à l'eau et ensuite éluée avec une solution de NaOH à une concentration d'environ 0,3 mol/l.

[0099] L'élution de la colonne de charbon actif permet de récupérer une solution de $\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$ dans du NaOH mais de garder l'iode éventuel capturé sur la colonne à une concentration préférée de 0,2 mol/l, laquelle sera ensuite conditionnée et emballée pour livraison.

[0100] Dans une forme d'utilisation particulière de l'invention, la solution de $\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$ dans du NaOH à une concentration préférée de 0,2 mol/l est chargée sur une résine d'alumine dans un générateur Mo-99/Tc-99 ou sur une résine d'oxyde de titane pour permettre la génération de radio-isotope du technétium 99 pour la médecine nucléaire.

[0101] Dans une deuxième forme de réalisation avantageuse du procédé selon la présente invention, l'acidification permet l'obtention d'une solution à pH acide afin de pouvoir fixer le radio-isotope de Mo-99 sur la colonne d'oxyde de titane (en présence d'un excès d'acide 1M).

[0102] La phase liquide acidifiée, appauvrie en iode est alors chargée sur une colonne d'oxyde de titane, conditionnée dans de l'acide nitrique 1 mol/l. Le Mo-99 est adsorbé sur l'oxyde de titane alors que la majorité des produits de fission contaminants sont éliminés dans l'effluent de la colonne d'oxyde de titane.

[0103] La colonne d'oxyde de titane sur laquelle le radio-isotope de Mo-99 est fixé est lavée par de l'acide nitrique à une concentration d'une mol/l, par de l'eau, du sulfite de sodium à une concentration d'environ 10 g/l et enfin encore une fois à l'eau. L'effluent de lavage est écarté

[0104] La colonne d'oxyde de titane est ensuite éluée par du NaOH à une concentration d'environ 2 mol/l et ensuite par de l'eau.

[0105] L'éluat récupéré de la colonne d'oxyde de titane forme le premier éluat du radio-isotope de Mo-99 sous forme de molybdate et comporte environ 90% ou plus de Mo-99 initialement présent.

[0106] Dans un mode préféré du procédé selon la présente invention, le premier éluat de la colonne est conservé pendant une période de temps comprise entre 20 et 48 h. Après cette période de temps prédéterminée, l'élution de la colonne d'oxyde de titane est poursuivie à l'aide de NaOH à une concentration d'environ 2 mol/l et forme une queue d'élution contenant le radio-isotope de Mo-99, sous forme de molybdate.

[0107] A ce stade, le premier éluat de molybdate et/ou ladite queue d'éluat de molybdate sont rassemblés ou non et acidifiés par une solution d'acide sulfurique à une concentration comprise entre 1 et 2 mol/l, de préférence

à 1,5 mol/l, formant ainsi une fraction acidifiée de radio-isotope de Mo-99 pur sous forme de sels de molybdène.

[0108] Pour plus de simplicité, on parlera dans la suite de l'éluat de radio-isotope de Mo-99, sous forme de molybdate, qu'il s'agisse du premier éluat du radio-isotope de Mo-99 ou de la queue d'éluat de molybdate, ou des deux rassemblés.

[0109] L'éluat de radio-isotope de Mo-99 de la colonne d'oxyde de titane est alors chargé sur une deuxième colonne chromatographique contenant une résine échangeuse d'ions de type anionique faible préalablement conditionnée dans de l'eau.

[0110] La colonne échangeuse d'ions est ensuite éluée au nitrate au moyen d'une solution de nitrate d'ammonium à une concentration d'environ 1 mol/l. L'éluat récupéré comprend donc le radio-isotope de Mo-99 dans une fraction contenant du nitrate d'ammonium.

[0111] La solution de nitrate d'ammonium contenant le radio-isotope de Mo-99 est alors chargée sur une colonne de charbon actif 35-50 mesh, qui peut être éventuellement dopé à l'argent pour récupérer les éventuelles traces d'iode. La colonne de charbon actif sur laquelle le radio-isotope de Mo-99 est fixé est alors lavée à l'eau et ensuite éluée avec une solution de NaOH à une concentration d'environ 0,3 mol/l.

[0112] L'élution de la colonne de charbon actif permet de récupérer une solution de $\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$ dans du NaOH mais de garder l'iode éventuel capturé sur la colonne à une concentration préférée de 0,2 mol/l, laquelle sera ensuite conditionnée et emballée pour livraison.

[0113] Dans une forme d'utilisation particulière de l'invention, la solution de $\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$ dans du NaOH à une concentration préférée de 0,2 mol/l est chargée sur une résine d'alumine dans un générateur Mo-99/Tc-99 ou sur une résine d'oxyde de titane pour permettre la génération de radio-isotope du technétium 99 pour la médecine nucléaire

[0114] Durant la formation de la bouillie, des produits de fission de l'uranium sont libérés, certains sous forme soluble, d'autres sous forme de gaz. C'est entre autre le cas du xénon et du krypton qui se trouvent donc dans une phase gazeuse. La phase gazeuse sort du milieu liquide et reste confinée dans le récipient étanche dans lequel la dissolution a lieu. Le récipient étanche comprend une sortie de phase gazeuse reliée un dispositif de récupération des gaz rares, isolé de l'environnement extérieur, mais également une entrée pour un gaz de balayage.

[0115] La phase gazeuse contient de l'ammoniac (NH_3) qui provient de la réduction des nitrates et les produits de fission gazeux principaux qui sont le Xe-133 et le Kr-85

[0116] La dissolution est une réaction très exothermique, ce qui impose deux gros réfrigérants. Néanmoins, de la vapeur d'eau est présente dans la phase gazeuse. La phase gazeuse est emportée par un gaz vecteur (He) vers le dispositif de récupération des gaz rares.

[0117] Dans une première variante, la récupération de

Xénon est réalisée comme suit : La phase gazeuse quitte le récipient étanche de dissolution basique et est amenée vers le dispositif de récupération des gaz rares. La phase gazeuse contenant entre autres le radio-isotope Xe-133 est d'abord passée au travers d'un tamis moléculaire permettant d'éliminer l'ammoniac (NH_3) et la vapeur d'eau. Ensuite, la phase gazeuse est passée au travers de silicagel afin d'éliminer toute trace de vapeur d'eau résiduelle. La phase gazeuse est alors amenée au piège cryogénique.

[0118] Dans une deuxième variante avantageuse selon la présente invention, la phase gazeuse est adsorbée sur de la zéolithe, en particulier sur de un titanosilicate ou sur un aluminosilicate dopé à l'argent, de préférence sur de la Ag-ETS-10 ou de la Ag-chabazite. Elle sera ensuite soit commercialisée directement sur la zéolithe, soit désorbée à chaud et envoyée vers un piège cryogénique.

[0119] La phase gazeuse contenant entre autres le radio-isotope Xe-133 est donc amenée au piège cryogénique dans un tube en forme de U plongé dans de l'azote liquide (soit à -196°C) contenu dans un récipient blindé, au travers de rognures d'inox.

[0120] Les rognures d'inox 316 sont fabriquées à partir de tige d'inox 316 présentant un diamètre compris entre 1,5 et 2 cm et d'une longueur comprise entre 10 et 20 cm, de préférence entre 14 et 18 cm, plus particulièrement d'environ 16 cm à l'aide d'une fraise à 4 lèvres d'un diamètre de 16 mm au moyen d'un étau hydraulique. La vitesse de la fraiseuse comportant la fraise susdite est de 90 t/min et réglée avec une vitesse d'avancement de 20 mm/min. La profondeur de passe de la fraise est d'environ 5 mm.

[0121] Les rognures d'inox présentent un poids moyen compris entre 20 et 30 mg/rognure, de préférence entre 22 et 28 mg/rognure et une densité non tapée une fois mise en forme comprise entre 1,05 et 1,4.

[0122] Les rognures d'inox présentent en moyenne une longueur de 7 mm, un diamètre d'environ 2,5 mm ainsi qu'une épaisseur d'environ 1,7 mm.

[0123] Le tube en U comporte une quantité de rognure comprise entre 90 g et 110 g. Le volume de rognures d'inox 316 compris dans le tube en U est entièrement immergé dans de l'azote liquide.

[0124] Le radio-isotope Xe-133 issu de ladite phase gazeuse contenant le radio-isotope Xe-133 est alors capturé par liquéfaction dudit Xe-133 au moyen desdites rognures d'inox refroidies, lesquelles capturent le Xe-133 par condensation.

[0125] La température de liquéfaction du Xe-133 se situe aux environs de -107°C . Par conséquent, le Xe gazeux est condensé sous forme liquide sur les rognures d'inox.

[0126] Par contre, puisque la température de liquéfaction du Kr-85 se situe autour de -152°C , il y a une quantité nettement moindre de Kr qui est piégée dans le piège à azote liquide et le Kr résiduel est collecté dans des pièges spécifiques avec les gaz issus du procédé décrit ici, à

savoir, entre autres la phase gazeuse substantiellement appauvrie en Xe-133.

[0127] Une fois que le Xe-133 a été capturé par le piège à azote liquide, les canalisations sont purgées et l'injection d'azote liquide est coupée et le piège est mis en contact avec une ampoule sous vide dont le volume est 50 fois plus grand que le volume des rognures contenu dans le piège à azote liquide.

[0128] Le piège à azote liquide est alors, en circuit fermé avec l'ampoule de collecte, porté à la température ambiante. Après réchauffement 99% du Xe-133 initialement présent sous forme gazeuse se retrouve dans l'ampoule.

[0129] Dans une variante du procédé selon la présente invention, les radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 résiduels qui ne sont pas capturés par la résine d'alumine dopée à l'argent avant acidification, sont alors récupérés au moment de l'acidification de la bouillie basique qui permet l'obtention d'une solution à pH acide qui permet la fixation du radio-isotope de Mo-99 sur la colonne d'alumine, l'acidification permet aussi de libérer les radio-isotopes de l'iode en vue de leur récupération.

[0130] La récupération de l'iode peut alors être réalisée pendant et après l'acidification du filtrat basique préalablement refroidi.

[0131] Les radio-isotopes de l'iode sont dégagés par chauffage du filtrat acidifié à une température supérieure à 93°C , de préférence supérieure ou égale à 95°C , de préférence entre 96°C et 99°C , mais de préférence inférieure à 100°C et maintenue sous bullage pour favoriser le dégagement d'iode sous forme gazeux.

[0132] Durant le chauffage du filtrat acidifié, il y a formation d'une phase gazeuse qui contient les radio-isotopes de l'iode mais également une partie du filtrat qui s'est évaporée. L'acidificateur comporte une tubulure de sortie de phase aqueuse qui plonge dans un récipient fermé contenant de l'eau. Une autre tubulure sort de ce récipient fermé. La phase aqueuse quitte donc l'acidificateur et est mise à buller dans l'eau contenue dans le récipient fermé. De cette manière, la partie du filtrat qui s'est évaporée est dissoute dans l'eau contenue dans le récipient fermé, tandis que la partie insoluble, à savoir les radio-isotopes de l'iode se retrouvent au-dessus de la surface d'eau, dans le récipient fermé et le quittent au moyen de la tubulure de sortie du récipient fermé vers un deuxième récipient fermé, à savoir un piège contenant du NaOH à une concentration de 3 mol/l. Les radio-isotopes de l'iode sont alors transformés en iodure et solubilisés dans le NaOH contenu dans le piège à iode et forme une solution brute d'iode.

[0133] Dans un mode préféré du procédé selon la présente invention, la solution aqueuse du piège au NaOH contenant les iodures de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131, est ensuite purifiée par une deuxième acidification. La solution brute est transférée dans une cellule de purification de l'iode. La solution brute est ensuite acidifiée par $\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{H}_2\text{O}_2$ pour produire à nouveau de l'iode gazeux, lequel est capturé dans des barboteurs

NaOH 0,2 M. Cette solution est appelée « solution mère » et est alors ensuite conditionnée en flacons hermétique contenu dans une enceinte blindée en vue de son expédition vers le client.

[0134] Il est bien entendu que la présente invention n'est en aucune façon limitée aux formes de réalisations décrites ci-dessus et que bien des modifications peuvent y être apportées sans sortir du cadre des revendications annexées.

Revendications

1. Procédé de production d'une fraction de radio-isotopes d'iode, en particulier d'I-131, comprenant les étapes de :

- (i) Dissolution basique de cibles d'uranium enrichi avec obtention d'une bouillie basique contenant des sels d'aluminium, de l'uranium et des isotopes issus de la fission de l'uranium enrichi et d'une phase gazeuse de Xe-133,
- (ii) Filtration de ladite bouillie basique afin d'isoler d'une part une phase solide contenant l'uranium et d'autre part une solution basique de molybdate et des sels de radio-isotopes d'iode
- (iii) Adsorption desdits sels de radio-isotopes d'iode sur une résine d'alumine dopée à l'argent et récupération de ladite solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent, et
- (iv) Récupération de ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131,

caractérisé en ce que ladite récupération de ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 comprend un lavage de la résine d'alumine dopée à l'argent par une solution de NaOH à une concentration comprise entre 0,2 et 1,5 mol/l, de préférence entre 0,3 et 1 mol/l et de manière plus préférentielle d'environ 0,5 mol/l et une élution de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 par une solution de thio-urée présentant une concentration en thio-urée comprise entre 0,5 mol/l et 1,5 mol/l, de préférence comprise entre 0,8 et 1,2 mol/l, plus préférentiellement aux environs de 1 mol/l avec une collecte d'un éluat contenant lesdits radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de thio-urée.

2. Procédé de production d'une fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 selon la revendication 1, dans lequel lesdites cibles d'uranium sont des cibles d'uranium faiblement enrichi.
3. Procédé de production d'une fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 selon la reven-

dication 2, comprenant en outre, avant ladite filtration une addition de nitrate d'alcalino-terreux, plus particulièrement de strontium, de calcium, de baryum, de préférence de baryum et de carbonate de sodium à ladite bouillie basique.

4. Procédé de production d'une fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, comprenant en outre une acidification dudit éluat contenant lesdits de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de thio-urée par addition d'une solution tampon, en particulier d'une solution d'acide phosphorique à une concentration comprise entre 0,5 et 2 mol/l, de préférence comprise entre 0,8 et 1,5, et de manière plus préférentielle d'environ 1 mol/l avec une récupération d'une solution acidifiée de sels de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131.
5. Procédé de production d'une fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 selon la revendication 4, comprenant en outre une purification de ladite solution acidifiée de sels de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131, ladite purification comprenant un chargement de ladite solution acidifiée de sels de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 sur une colonne échangeuse d'ions, un lavage de ladite résine échangeuse d'ions à l'aide d'eau, une élution de ladite résine échangeuse d'ions à l'aide de NaOH à une concentration comprise entre 0,5 et 2,5 mol/l, de préférence comprise entre 0,8 mol/l et 1,5 mol/l et de manière particulièrement préférentielle d'environ 1 mol/l avec une récupération de ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de NaOH.
6. Procédé de production d'une fraction contenant un radio-isotope d'iode 131 selon la revendication 5, dans lequel ladite résine échangeuse d'ions est une résine anionique faible.
7. Procédé de production d'une fraction contenant un radio-isotope d'iode 131 selon l'une quelconque des revendications précédentes, comprenant en outre une acidification de la solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent, avec formation d'une solution acide de sels de molybdène et dégagement de radio-isotopes résiduels de l'iode, en particulier I-131, sous forme de gaz en vue de sa récupération.
8. Procédé de production d'une fraction contenant un radio-isotope d'iode 131, selon la revendication 7, comprenant en outre, avant ladite acidification de la solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au

travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent, un refroidissement de la solution basique de molybdate appauvrie de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 passant au travers de ladite résine d'alumine dopée à l'argent jusqu'à une température inférieure ou égale à 60°C, de préférence inférieure ou égale à 55°C, plus particulièrement, inférieure ou égale à 50°C.

9. Procédé de production de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 selon la revendication 7 ou la revendication 8, comprenant en outre, après acidification, un chauffage de la solution acide de sels de molybdène à température supérieure à 93°C, de préférence supérieure ou égale à 95°C, de préférence entre 96°C et 99°C, mais de préférence inférieure à 100°C, accompagné d'un bullage d'air.
10. Procédé de production de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 selon l'une quelconque des revendications 7 à 9, dans lequel ladite récupération des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 lors de son dégagement est réalisé par un transfert des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz dans une tubulure reliée à une extrémité à un acidificateur dans lequel a lieu l'acidification et à une autre extrémité à un récipient fermé contenant une phase aqueuse et un milieu environnant, ledit transfert des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz étant réalisé de manière à aboutir directement dans la phase aqueuse dans laquelle les radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz passent au travers de la phase aqueuse et s'échappent sous forme de bulles vers le milieu environnant de la phase aqueuse, contenu dans le récipient fermé.
11. Procédé de production de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 selon la revendication 10, dans lequel ledit récipient fermé est relié par une tubulure à un deuxième récipient fermé qui contient un piège au NaOH et dans lequel le milieu environnant de la phase aqueuse est transféré du récipient fermé au deuxième récipient fermé contenant le piège au NaOH sous forme de solution à une concentration de 2 à 4, en particulier d'environ 3 mol/l, avec déchargement du milieu environnant contenant les radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 de la tubulure dans la solution du piège au NaOH, avec solubilisation des radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 sous forme de gaz en iodure de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131 dans la solution aqueuse du piège au NaOH.
12. Procédé de production d'une fraction contenant un radio-isotope d'iode 131 selon la revendication 11, dans lequel la solution aqueuse du piège au NaOH contenant les iodures de radio-isotopes de l'iode, en

particulier I-131, forme une solution brute d'iode, laquelle est ensuite purifiée par une deuxième acidification pour former de l'iode gazeux.

13. Procédé de production d'une fraction contenant un radio-isotope d'iode 131 selon l'une quelconque des revendications 5 à 7, dans lequel ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de NaOH contenant des iodures de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131, forme une solution brute d'iode et est ensuite purifiée par une deuxième acidification.
14. Procédé de production d'une fraction contenant un radio-isotope d'iode 131 selon la revendication 12 et la revendication 13, dans lequel ladite fraction de radio-isotopes de l'iode, en particulier d'I-131 dans une solution de NaOH et la solution aqueuse du piège au NaOH contenant les iodures de radio-isotopes de l'iode, en particulier I-131, sont rassemblées et purifiées ensemble par une deuxième acidification.
15. Fraction de radio-isotopes d'I-131 conditionnée dans une solution de NaOH présentant une pureté radiochimique en radio-isotopes d'I-131 supérieure à 97%, de préférence d'au moins 98%, plus particulièrement d'au moins 98,5 % de l'activité présente sous la forme chimique iodure dudit radio-isotope du I-131 par rapport à l'activité totale dudit radio-isotope du I-131 sous toutes ses formes dans ladite fraction.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, umfassend die folgenden Schritte:
 - (i) Basische Auflösung von Targets aus angereichertem Uran unter Erhalt einer basischen Aufschlammung, die Salze von Aluminium, Uran und Isotopen aus der Spaltung von angereichertem Uran und einer Gasphase von Xe-133 enthält,
 - (ii) Filtration dieser basischen Aufschlammung, um einerseits eine feste uranhaltige Phase und andererseits eine basische Lösung von Molybdat und Salzen von Iod-Radioisotopen zu isolieren,
 - (iii) Adsorption der Salze von Iod-Radioisotopen an einem silberdotierten Aluminiumoxidharz und Rückgewinnung der basischen Molybdatlösung, die an Iod-Radioisotopen abgereichert ist, insbesondere an I-131, das durch das silberdotierte Aluminiumoxidharz hindurchgeht, und
 - (iv) Rückgewinnung der Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131,

dadurch gekennzeichnet, dass die Rückgewinnung der Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, ein Waschen des silberdotierten Aluminiumoxidharzes mit einer NaOH-Lösung mit einer Konzentration zwischen 0,2 und 1,5 mol/l, bevorzugt zwischen 0,3 und 1 mol/l und bevorzugter von etwa 0,5 mol/l, und ein Eluieren von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, durch eine Thioharnstofflösung mit einer Thioharnstoffkonzentration zwischen 0,5 mol/l und 1,5 mol/l, bevorzugt zwischen 0,8 und 1,2 mol/l, bevorzugter um 1 mol/l, mit einer Sammlung eines Eluats, das die Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, enthält, in einer Thioharnstofflösung, umfasst.

2. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, nach Anspruch 1, wobei es sich bei den Uran-Targets um Targets aus schwach angereichertem Uran handelt.
3. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, nach Anspruch 2, weiter umfassend, vor der Filtration, eine Zugabe von Erdalkalinitrat, insbesondere von Strontium, Calcium, Barium, bevorzugt Barium und Natriumcarbonat, zu der basischen Aufschlämmung.
4. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, nach einem der Ansprüche 1 bis 3, weiter umfassend eine Säuerung des Eluats, das die Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, enthält in einer Lösung von Thioharnstoff durch Zugabe einer Pufferlösung, insbesondere einer Phosphorsäurelösung mit einer Konzentration zwischen 0,5 und 2 mol/l, bevorzugt zwischen 0,8 und 1,5, und bevorzugter etwa 1 mol/l, mit einer Rückgewinnung einer gesäuerten Lösung von Salzen von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131.
5. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, nach Anspruch 4, weiter umfassend eine Reinigung der gesäuerten Lösung von Salzen von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, wobei die Reinigung eine Beladung der gesäuerten Lösung mit Salzen von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, auf eine Ionenaustauschersäule, ein Waschen des Ionenaustauscherharzes mit Hilfe von Wasser, ein Eluieren des Ionenaustauscherharzes mit Hilfe von NaOH bei einer Konzentration zwischen 0,5 und 2,5 mol/l, bevorzugt zwischen 0,8 mol/l und 1,5 mol/l und besonders bevorzugt etwa 1 mol/l mit einer Rückgewinnung der Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, in einer NaOH-Lösung, umfasst.
6. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion, die ein Radioisotop von Iod-131 enthält, nach Anspruch 5, wobei es sich bei dem Ionenaustauscherharz um ein

schwach anionisches Harz handelt.

7. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion, die ein Radioisotop von Iod 131 enthält, nach einem der vorstehenden Ansprüche, weiter umfassend eine Säuerung der basischen Molybdatlösung, die an Iod-Radioisotopen abgereichert ist, insbesondere an I-131, das durch das silberdotierte Aluminiumoxidharz hindurchgeht, unter Bildung einer sauren Lösung von Molybdänsalzen und Freisetzung von Restradioisotopen von Iod, insbesondere I-131, in Form eines Gases zu dessen Rückgewinnung.
8. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion, die ein Radioisotop von Iod-131 enthält, nach Anspruch 7, weiter umfassend, vor der Säuerung der basischen Molybdatlösung, die an Iod-Radioisotopen abgereichert ist, insbesondere an I-131, das durch das silberdotierte Aluminiumoxidharz hindurchgeht, eine Abkühlung der basischen Molybdatlösung, die an Iod-Radioisotopen abgereichert ist, insbesondere an I-131, das durch das silberdotierte Aluminiumoxidharz hindurchgeht, auf eine Temperatur von weniger als oder gleich 60 °C, bevorzugt weniger als oder gleich 55 °C, insbesondere weniger als oder gleich 50 °C.
9. Verfahren zur Herstellung von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, nach Anspruch 7 oder Anspruch 8, weiter umfassend, nach der Säuerung, ein Erhitzen der sauren Lösung von Molybdänsalzen auf eine Temperatur über 93 °C, bevorzugt über oder gleich 95 °C, bevorzugt zwischen 96 °C und 99 °C, aber bevorzugt unter 100 °C, begleitet von einer Luftblasenbildung.
10. Verfahren zur Herstellung von Iod-Radioisotopen, insbesondere I-131, nach einem der Ansprüche 7 bis 9, wobei die Rückgewinnung der Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, bei dessen Freisetzung durch eine Überführung der Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, in Form von Gas in ein Rohr, das an einem Ende mit einem Säuerungsmittel, in dem die Säuerung stattfindet, und am anderen Ende mit einem geschlossenen Behälter, der eine wässrige Phase und ein Umgebungsmedium enthält, verbunden ist, durchgeführt wird, wobei die Überführung der Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, in Form von Gas, so durchgeführt wird, dass sie direkt in die wässrige Phase führt, in der die Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, in Form von Gas die wässrige Phase durchlaufen und in Form von Blasen in das Umgebungsmedium der wässrigen Phase entweichen, das in dem geschlossenen Behälter enthalten ist.
11. Verfahren zur Herstellung von Iod-Radioisotopen, insbesondere I-131, nach Anspruch 10, wobei der

geschlossene Behälter durch ein Rohr mit einem zweiten geschlossenen Behälter verbunden ist, der eine NaOH-Falle enthält, und wobei das Umgebungsmedium der wässrigen Phase aus dem geschlossenen Behälter in den zweiten geschlossenen Behälter überführt wird, der die NaOH-Falle in Form einer Lösung in einer Konzentration von 2 bis 4, insbesondere etwa 3 mol/l, enthält, wobei das Umgebungsmedium, das die Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, enthält, aus dem Rohr in die NaOH-Fallen-Lösung entladen wird, wobei die Iod-Radioisotope, insbesondere I-131, in Form von Iodidgas von Iod-Radioisotopen, insbesondere I-131, in der wässrigen NaOH-Fallen-Lösung gelöst werden.

12. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion, die ein Radioisotop von Iod 131 enthält, nach Anspruch 11, wobei die wässrige NaOH-Fallen-Lösung, die die Iodide von Iod-Radioisotopen, insbesondere I-131, enthält, eine Rohlösung von Iod bildet, die dann durch eine zweite Säuerung gereinigt wird, um gasförmiges Iod zu bilden.

13. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion, die ein Radioisotop von Iod 131 enthält, nach einem der Ansprüche 5 bis 7, wobei die Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere I-131, in einer NaOH-Lösung, die Iodide von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, enthält, eine Rohlösung von Iod bildet und dann durch eine zweite Säuerung gereinigt wird.

14. Verfahren zur Herstellung einer Fraktion, die ein Radioisotop von Iod 131 enthält, nach Anspruch 12 und Anspruch 13, wobei die Fraktion von Iod-Radioisotopen, insbesondere von I-131, in einer NaOH-Lösung und die wässrige NaOH-Fallen-Lösung, die die Iodide von Iod-Radioisotopen, insbesondere I-131, enthält, zusammengeführt und gemeinsam durch eine zweite Säuerung gereinigt werden.

15. Fraktion von Iod-Radioisotopen von I-131, konditioniert in einer NaOH-Lösung mit einer radiochemischen Reinheit der Iod-Radioisotope von I-131 von mehr als 97 %, bevorzugt von mindestens 98 %, insbesondere von mindestens 98,5 % der in der chemischen Iodidform des Radioisotops von I-131 vorhandenen Aktivität, bezogen auf die Gesamtaktivität des Radioisotops von I-131 in allen seinen Formen in dieser Fraktion.

Claims

1. Method for producing an iodine radioisotopes fraction, in particular of 1-131, comprising the following steps:

- (i) Alkaline dissolution of enriched uranium targets by obtaining an alkaline slurry containing aluminium salts, uranium and isotopes generated by the fission of enriched uranium and a gaseous phase of Xe-133,
- (ii) Filtration of said alkaline slurry in order to isolate, on the one hand, a solid phase containing the uranium and, on the other hand, an alkaline solution of molybdate and salts of iodine radioisotopes
- (iii) Adsorption of said salts of iodine radioisotopes on an alumina resin doped with silver and recovery of said alkaline solution of molybdate depleted of iodine radioisotopes, in particular of 1-131, passing through said alumina resin doped with silver, and
- (iv) Recovery of said iodine radioisotopes fraction, in particular of 1-131,

characterised in that said recovery of said iodine radioisotopes fraction, in particular of 1-131, comprises a washing of the alumina resin doped with silver with a solution of NaOH at a concentration of between 0.2 and 1.5mol/l, preferably between 0.3 and 1mol/l and more preferably of about 0.5mol/l, and an elution of the iodine radioisotopes, in particular of 1-131 by a thiourea solution presenting a thiourea concentration of between 0.5mol/l and 1.5mol/l, preferably of between 0.8 and 1.2mol/l, more preferably of about 1mol/l, with a collection of an eluate containing said iodine radioisotopes, in particular 1-131, in a thiourea solution.

- 2. Method for producing an iodine radioisotopes fraction, in particular of 1-131 according to claim 1, wherein said uranium targets are low enriched uranium targets.
- 3. Method for producing an iodine radioisotopes fraction, in particular of 1-131 according to claim 2, further comprising, before said filtration, an addition of alkaline-earth nitrate, more particularly of strontium, calcium, barium, preferably of barium and sodium carbonate to said alkaline slurry.
- 4. Method for producing an iodine radioisotopes fraction, in particular of 1-131 according to any one of claims 1 to 3, further comprising an acidification of said eluate containing said iodine radioisotopes, in particular 1-131 in a thiourea solution by the addition of a buffer solution, in particular a solution of phosphoric acid with a concentration of between 0.5 and 2mol/l, preferably of between 0.8 and 1.5mol/l, and more preferably of about 1mol/l with a recovery of an acidified solution of iodine radioisotope salts, in particular of 1-131.
- 5. Method for producing an iodine radioisotopes frac-

- tion, in particular of I-131 according to claim 4, further comprising a purification of said acidified solution of iodine radioisotope salts, in particular of I-131, said purification comprising a loading of said acidified solution of iodine radioisotope salts, in particular of I-131 on an ion-exchange column, a washing of said ion-exchange resin with water, an elution of said ion-exchange resin with NaOH at a concentration of between 0.5 and 2.5mol/l, preferably of between 0.8mol/l and 1.5mol/l and particularly preferably of about 1mol/l with a recovery of said iodine radioisotopes fraction, in particular of I-131 in a solution of NaOH.
6. Method for producing a fraction containing a radioisotope of iodine 131 according to claim 5, wherein said ion-exchange resin is a weak anionic resin.
 7. Method for producing a fraction containing a radioisotope of iodine 131, according to any one of the preceding claims, further comprising an acidification of the alkaline solution of molybdate depleted of iodine radioisotopes, in particular of I-131 passing through said alumina resin doped with silver, with formation of an acid solution of molybdenum salts and release of residual iodine radioisotopes, in particular I-131, in the form of gas for the purpose of the recovery thereof.
 8. Method for producing a fraction containing a radioisotope of iodine 131, according to claim 7, further comprising, before said acidification of the alkaline molybdate solution depleted of iodine radioisotopes, in particular of I-131 passing through said alumina resin doped with silver, a cooling of the alkaline molybdate solution depleted of iodine radioisotopes, in particular of I-131 passing through said alumina resin doped with silver to a temperature below or equal to 60°C, preferably below or equal to 55°C, more particularly, below or equal to 50°C.
 9. Method for producing iodine radioisotopes, in particular I-131 according to claim 7 or claim 8, further comprising, after acidification, heating of the acid solution of molybdenum salts to a temperature greater than 93°C, preferably greater or equal to 95°C, preferably between 96°C and 99°C, but preferably below 100°C, accompanied by air bubbling.
 10. Method for producing iodine radioisotopes, in particular I-131 according to any one of claims 7 to 9, wherein said recovery of the iodine radioisotopes, in particular I-131 as the release thereof is carried out by a transfer of the iodine radioisotopes, in particular I-131 in the form of gas in a pipe connected at one end to an acidifier wherein the acidification occurs and at another end to a closed container containing an aqueous phase and a surrounding medium, said transfer of iodine radioisotopes, in particular I-131 in the form of gas being carried out so as to result directly in the aqueous phase wherein the iodine radioisotopes, in particular I-131, in the form of gas pass through the aqueous phase and escape in the form of bubbles in the surrounding medium of the aqueous phase, contained in the closed container.
 11. Method for producing iodine radioisotopes, in particular I-131 according to claim 10, wherein said closed container is connected by a pipe to a second closed container that contains an NaOH trap and wherein the surrounding medium of the aqueous phase is transferred from the closed container to the second closed container containing the NaOH trap in the form of a solution at a concentration from 2 to 4, in particular of about 3mol/l, with discharge of the surrounding medium containing the iodine radioisotopes, in particular I-131 of the pipe into the solution of the NaOH trap, with solubilisation of the iodine radioisotopes, in particular I-131 in the form of gas into iodide of iodine radioisotopes, in particular I-131 in the aqueous solution of the NaOH trap.
 12. Method for producing a fraction containing a radioisotope of iodine-131 according to claim 11, wherein the aqueous solution of the NaOH trap containing the iodides of the iodine radioisotopes, in particular I-131, forms a crude iodine solution, which is then purified by a second acidification to form gaseous iodine.
 13. Method for producing a fraction containing a radioisotope of iodine-131 according to any one of claims 5 to 7, wherein said fraction of iodine radioisotopes, in particular of I-131 in an NaOH solution containing iodides of the iodine radioisotopes, in particular I-131, forms a crude iodine solution and is then purified by a second acidification.
 14. Method for producing a fraction containing a radioisotope of iodine-131 according to claim 12 and claim 13, wherein said iodine radioisotopes fraction, in particular of I-131 in an NaOH solution and the aqueous solution of the NaOH trap containing the iodides of iodine radioisotopes, in particular I-131, are collected and purified together by a second acidification.
 15. I-131 radioisotopes fraction conditioned in a solution of NaOH having a radiochemical purity in I-131 radioisotopes greater than 97%, preferably of at least 98%, more particularly of at least 98.5% of the activity present in the chemical iodine form of said I-131 radioisotope with respect to the total activity of said I-131 radioisotope in all the forms thereof in said fraction.

RÉFÉRENCES CITÉES DANS LA DESCRIPTION

Cette liste de références citées par le demandeur vise uniquement à aider le lecteur et ne fait pas partie du document de brevet européen. Même si le plus grand soin a été accordé à sa conception, des erreurs ou des omissions ne peuvent être exclues et l'OEB décline toute responsabilité à cet égard.

Littérature non-brevet citée dans la description

- **MUSHTAQ et al.** Preparation and characterization of silver coated alumina for isolation of iodine-131 from fission products. *Journal of Engineering and Manufacturing Technology*, 2014 [0002] [0019]
- Reprocessing of irradiated Uranium 235 for the production of Mo-99, I-131, Xe-133 radioisotopes. *J. Szilard - revue IRE tijdschrift*, 1985, vol. 9 (3 [0006]
- **J.D. HEM ; C.E. ROBERSON.** Form and Stability of Aluminium Hydroxide Complexes in Dilute Solutions. *Chemistry of Aluminum in Natural Water*, 1967 [0082]