

PATENTOVÝ SPIS

(11) Číslo dokumentu:

306 722

(13) Druh dokumentu: **B6**

(51) Int. Cl.:

B01D 15/42 (2006.01)
B01D 15/36 (2006.01)
B01D 15/04 (2006.01)
C22B 60/02 (2006.01)
C22B 3/42 (2006.01)
G21G 1/04 (2006.01)

(19)
ČESKÁ
REPUBLIKA



ÚŘAD
PRŮMYSLOVÉHO
VLASTNICTVÍ

(21) Číslo přihlášky: **2016-151**
(22) Přihlášeno: **16.03.2016**
(40) Zveřejněno: **24.05.2017**
(Věstník č. 21/2017)
(47) Uděleno: **12.04.2017**
(24) Oznámení o udělení ve věstníku: **24.05.2017**
(Věstník č. 21/2017)

(56) Relevantní dokumenty:

WO 2011134672 A1; WO 2008108888 A2; US 5809394; US 2003/0194364 A1; US 2004/0062695 A1; WO 98/55201 A1.

(73) Majitel patentu:
České vysoké učení technické v Praze, Praha 6 -
Dejvice, CZ
ÚJV Řež, a.s., Husinec - Řež, CZ
Univerzita Karlova v Praze, Přírodovědecká
fakulta, Praha 1 - Staré Město, CZ

(72) Původce:
RNDr. Ján Kozempel, Ph.D., Uherský Brod, CZ
RNDr. Martin Vlk, Ph.D., Unín, CZ
Ing. Petra Mičolová, Rtyně v Podkrkonoší, CZ
Ing. Ekaterina Kukleva, Karlovy Vary, CZ
Kateřina Fialová, Blovice, CZ
Bc. Lucie Kománková, Praha 6 - Nebušice, CZ
Bc. Anna Bajzíková, Liberec, CZ
Ing. Josef Podlaha, Klecany, CZ
Karel Svoboda, Kladno, CZ
Patrick Burian, Chlumín, CZ
Michal Hoffmann, Rožtoky u Prahy, CZ
Stanislav Smrček, Praha 4 - Krč, CZ

(74) Zástupce:
INVENTIA s.r.o., RNDr. Kateřina Hartvichová, Na
Bělidle 3, 150 00 Praha 5

(54) Název vynálezu:
**Způsob izolace Ac ze směsi radia, aktinia a
thoria**

(57) Anotace:
Předkládané řešení poskytuje způsob izolace Ac ze směsi
radia, aktinia a thoria, který zahrnuje následující kroky:
a) směs Ra/Ac/Th se nanese na separační kolonu
obsahující anex na bázi styrenu síťovaného
divinylbenzenem, kde obsah síťovacího činidla je
v rozsahu 5 až 50 %, výhodně 8 až 16 % (např. Dowex
1x8 – silný anex síťovaný 8 a více % divinylbenzenem),
v nitratovém cyklu a eluuje se elučním roztokem
obsahujícím směs 0,6 až 0,8 M vodného roztoku kyseliny
dusičné a methanolu v objemových poměrech roztok
kyseliny dusičné:methanol = 30:70 až 10:90,

b) eluát ze separační kolony se provádí přes dočišťovací
kolonu obsahující anex na bázi styrenu síťovaného
divinylbenzenem, kde obsah síťovacího činidla je
v rozsahu 5 až 50 %, výhodně 8 až 16 % (např. Dowex
1x8 – silný anex síťovaný 8 a více % divinylbenzenem),
v nitratovém cyklu a eluuje se elučním roztokem
obsahujícím směs 0,6 až 0,8 M vodného roztoku kyseliny
dusičné a methanolu v objemových poměrech roztok
kyseliny dusičné:methanol = 30:70 až 10:90,
c) eluát z kroku b), obsahující ²²⁶Ra, se izoluje,
s výhodou pro recyklaci pro opakované ozařování,
d) Ac a/nebo Th se ze separační i dočišťovací kolony
vymyje elučním roztokem obsahujícím 5 až 10 M
minerální kyselinu a popřípadě alespoň jedno
komplexační činidlo, s výhodou je minerální kyselinou
HNO₃ a/nebo HCl.
Pokud je výstupem kroku d) směs Ac a Th, dále se dělí
v dalších krocích postupu.

CZ 306722 B6

Způsob izolace Ac ze směsi radia, aktinia a thoria

Oblast techniky

5

Předkládaný vynález se týká způsobu přípravy a získání ^{227}Ac a jeho dceřiných produktů, a recyklace terčového ^{226}Ra , který umožňuje zvýšení výtěžku ^{227}Ac .

10 Dosavadní stav techniky

15 Aktinium-227 se získává ozařováním ^{226}Ra v jaderném reaktoru pomalými neutrony, přičemž vzniká nejprve ^{227}Ra (42 min), které se následně rozpadá na ^{227}Ac (21,8 roku), které je v rovnováze s dceřiným ^{227}Th (18,6 dne), které se rozpadá přeměnou alfa na ^{223}Ra (11,4 dne) a jeho další produkty rozpadu. Jako produkt parazitní reakce také vzniká ^{228}Ac (6,1 h) rozpadající se na ^{228}Th (1,9 roku), které je v rovnováze s ^{224}Ra (3,6 dne). Rozpadové schéma je znázorněno na obrázku 1. Aktinium-227 je však i členem přírodní uranové rozpadové řady. Rozpadové schéma je znázorněno na obrázku 1.

20 Je známo několik postupů získávání aktinia z takto vznikajících směsí, založených na srážení z homogenních roztoků ve formě méně rozpustných solí $\text{Ac}(\text{Ox})_3$ nebo spolusrážením s PbSO_4 (*Anal Chem* **28**, 11, 1780 až 1782, 1956 a Report MLM-967, 1954). Komplementární metodou získávání aktinia je spolusrážení RaCO_3 , kdy se aktinium hromadí v matečném roztoku (Baetslé, L. H. and Droissart, A. (1973) Production and Applications of ^{227}Ac . Report BLG-483). Avšak
25 tyto metody nejsou optimální z hlediska kvantity získaného aktinia a množství prováděných separačních kroků a jsou vhodné pro velká množství radionuklidů. Popsány byly rovněž postupy získávání aktinia pomocí kolonové chromatografie na měničích iontů s využitím anexu MP1 v NO_3^- a Cl^- cyklu pro získání beznosičového aktinia (*Applied Radiation and Isotopes* **62**, 667 až 679, 2005). V dalších pracích je popisováno využití anexu na bázi styrénu síťovaného divinylbenzenem v NO_3^- cyklu, např.: Dowex 50 nebo Dowex 1, kdy jako eluční činidla byly použity
30 roztoky silných kyselin (*Radiochim Acta* **9**, 4, 181 až 186, 1968), eventuálně byla používána kombinace katexu a titanium fosfátu TiP v 1N HNO_3 (*J Radioanal Chem* **35**, 185 až 196, 1977). Další postupy získávání aktinia jsou založeny zejména na extrakční chromatografii a použití extrakčních činidel. Při separaci pomocí extrakční chromatografie se stacionární fázi impregnovanou extrakčním činidlem dochází také k vymývání extrakčního činidla ze sorpčního lože kolony a tím jednak k degradaci sorpční účinnosti a také ke zhoršení chemické čistoty eluátu. U separačních metod založených na rozdělování pomocí iontoměničů zejména na bázi styrenu síťovaného divinylbenzenem, např. Dowex 1 a Dowex 50, byly pozorovány problémy s vymýváním Th a Ac při dlouhodobém používání, nebo ztráty těchto radionuklidů (*J Radioanal Nucl Chem*, **260**,
40 167 až 172, 2004 a *J Radioanal Nucl Chem*, **285**, 667 až 673, 2010).

Podstata vynálezu

45 Předkládaný vynález poskytuje způsob izolace Ac, například radionuklidu ^{227}Ac , ze směsi radia, aktinia a thoria (např. $^{226}\text{Ra}/^{223}\text{Ra}/^{227}\text{Ac}/^{227}\text{Th}/^{228}\text{Th}/^{229}\text{Th}$). Výhodou této metody je mimo jiné to, že se při ní izoluje ^{226}Ra , které je tak možno recyklovat pro opakované ozařování.

Způsob podle vynálezu zahrnuje následující kroky:

50

a) směs $\text{Ra}/\text{Ac}/\text{Th}$, např. $^{226}\text{Ra}/^{227}\text{Ac}/\text{Th}$, se nanese na separační kolonu obsahující anex na bázi styrenu síťovaného divinylbenzenem, kde obsah síťovacího činidla je v rozsahu 5 až 50 %, výhodně 8 až 16 % (např. Dowex 1x8 – silný anex síťovaný 8 a více % divinylbenzenem), v nitrátovém cyklu a eluuje se elučním roztokem obsahujícím směs 0,6 až 0,8 M vodného rozto-

ku kyseliny dusičné a methanolu v objemových poměrech roztok kyseliny dusičné:methanol = 30 : 70 až 10 : 90,

5 b) eluát ze separační kolony se provádí přes dočišťovací kolonu obsahující anex na bázi styrenu síťovaného divinylbenzenem, kde obsah síťovacího činidla je v rozsahu 5 až 50 %, výhodně 8 až 16 % (např. Dowex 1x8 – silný anex síťovaný 8 a více % divinylbenzenem), v nitrátovém cyklu a eluuje se elučním roztokem obsahujícím směs 0,6 až 0,8 M vodného roztoku kyseliny dusičné a methanolu v objemových poměrech roztok kyseliny dusičné:methanol = 30 : 70 až 10 : 90,

10 c) eluát z kroku b), obsahující Ra, se izoluje, s výhodou pro recyklaci pro opakované ozařování,

d) Ac a/nebo Th se ze separační i dočišťovací kolony vymyje elučním roztokem obsahujícím 5 až 10 M minerální kyselinu a popřípadě alespoň jedno komplexační činidlo, s výhodou je minerální kyselinou HNO₃ a/nebo HCl.

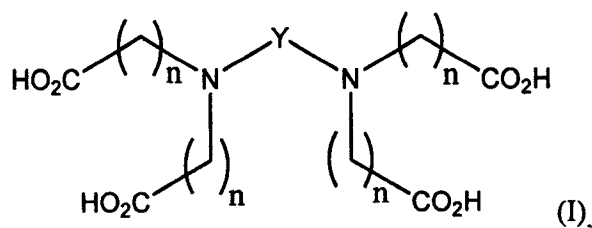
15 Eluce v kroku d) se obvykle provádí za jímání jednotlivých frakcí, přičemž přední frakce typicky obsahují aktinium, střední frakce typicky obsahují směs aktinia a thoria, a zadní frakce typicky obsahují thorium. Může dojít i k úplnému rozdělení Ac a Th. Frakce obsahující izolované aktinium lze potom použít odpovídajícím způsobem dále, například jako zdroj ²²³Ra. Frakce obsahující izolované thorium lze případně také použít dále pro odpovídající účely.

20 Frakce eluátu obsahující Ac mohou popřípadě obsahovat malou příměs Ra vzniklého rozpadem Ac nebo Th. Zbytky Ra pak lze odstranit z roztoku Ac známými způsoby, např. sorpcí na MnO₂ při pH 4 až 8, přičemž Ac se následně eluuje 0,2M HNO₃.

25 Z celého eluátu z kroku d), nebo (pokud byly jímány frakce) z frakcí obsahujících směs aktinia a thoria lze izolovat aktinium dalšími kroky postupu, kdy se směs nanese na kolonu obsahující polymerní nosič obsahující komplexační činidlo, s výhodou je komplexační činidlo na polymerním nosiči kovalentně vázáno, a nanesená směs se eluuje 0,1 až 10 M minerální kyselinou, s výhodou vybranou ze skupiny zahrnující HNO₃ a/nebo HCl. Při kovalentní vazbě komplexačního činidla nedochází k jeho uvolňování z kolony.

35 Jako polymerní nosič v případě kovalentně vázaného komplexačního činidla může být použit polymer s aminovými nebo nitrilovými funkčními skupinami, ve formě kuliček, vláken nebo tkanin.

Komplexační činidlo je vybráno ze skupiny zahrnující polyaminokarboxylové kyseliny obecného vzorce I

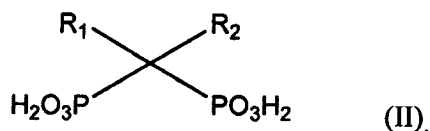


40 přičemž n může být 1 až 5, Y může být ze skupiny obsahující C1 až C10 alkan-1,1-diyl, C2 až C10 alkan-1,2-diyl, C3 až C10 alkan-1,3-diyl, C2 až C10 alken-1,1-diyl, C2 až C10 alken-1,2-diyl, C3 až C10 alken-1,3-diyl, C2 až C10 alkyn-1,1-diyl, C2 až C10 alkyn-1,2-diyl, C3 až C10 alkyn-1,3-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,1-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,2-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,3-diyl, C6 až C10 ar-1,2-diyl, C6 až C10 ar-1,3-diyl, C3 až C10 heteroar-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroar-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnu-

jící O, S, N, P; a/nebo sole polyaminokarboxylových kyselin s Na^+ , K^+ , Mn^{2+} , Ca^{2+} , Zn^{2+} , Fe^{3+} , Cu^{2+} ;

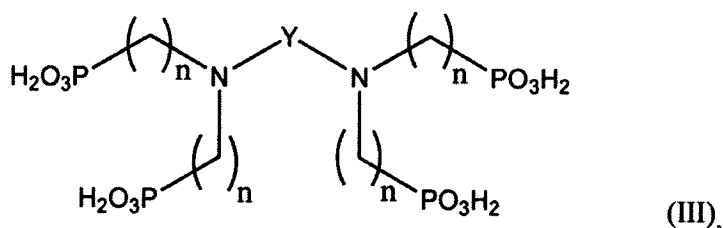
polyfosfonové kyseliny obecného vzorce II

5



10

přičemž R1, R2 mohou být stejné nebo různé, vybrané ze skupiny zahrnující vodík, C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C1 až C10 heteroalkyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, hydroxyl, nitril, amin, halogenid (F, Cl, Br, I); polyfosfonové kyseliny obecného vzorce III



15

20

přičemž n může být 1 až 5, Y může být ze skupiny obsahující C1 až C10 alkan-1,1-diyl, C2 až C10 alkan-1,2-diyl, C3 až C10 alkan-1,3-diyl, C2 až C10 alken-1,1-diyl, C2 až C10 alken-1,2-diyl, C3 až C10 alken-1,3-diyl, C2 až C10 alkyn-1,1-diyl, C2 až C10 alkyn-1,2-diyl, C3 až C10 alkyn-1,3-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,1-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,2-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,3-diyl, C6 až C10 ar-1,2-diyl, C6 až C10 ar-1,3-diyl, C3 až C10 heteroar-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroar-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P;

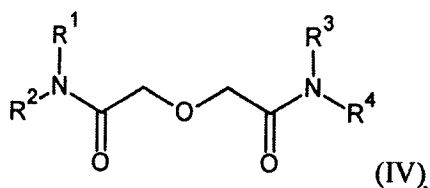
25

30

estery kyseliny fosforite s C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C1 až C10 heteroalkyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, hydroxyl, nitril, amin, halogenid (F, Cl, Br, I), s výhodou např. bis-(2-ethyl-hexyl)-fosforitou kyselinu (HDEHP); amino tris(methylenfosforitou) kyselinu (ATMP) a její estery s C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C1 až C10 heteroalkyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, hydroxyl, nitril, amin, halogenid (F, Cl, Br, I);

35

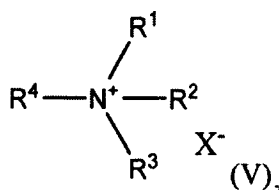
diglykolylamidy obecného vzorce IV



40

přičemž R1, R2, R3 mohou být stejné nebo různé, vybrané ze skupiny zahrnující vodík, C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny

zahrnující O, S, N, P, R4 symbolizuje zbytek molekuly polymerního nosiče nebo má stejný význam jako R1 až R3. Výhodným diglykolylamidem může být například *N,N,N',N'*-tetraoktyldiglykolylamid (TODGA); kvartérní amoniové sole



5

příčemž R1, R2, R3, R4 mohou být stejné nebo různé, vybrané ze skupiny zahrnující vodík, C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, X může být Cl⁻, Br⁻ a I⁻, s výhodou např.: N-Methyl-N,N,N-trioktylamonium chlorid (Aliquat 336).

10

S výhodou lze také použít dikarbolidy, thenoyltrifluoracetón (TTA) nebo nitriloctovou kyselinou (NTA), fenyloctovou kyselinou (FOK).

15

Provedení pro separaci směsi Ac a Th lze rovněž provádět na dvou za sebe zařazených kolonách, příčemž jedna z nich obsahuje polymerní nosič s kovalentně vázaným komplexačním činidlem a jedna z nich obsahuje anex.

20

Takto lze dosáhnout snadného a spolehlivého oddělení Ac a Th po předchozím oddělení Ra.

Pro kroky a) a b) lze s výhodou použít zařízení podle přihlášky užitého vzoru PUV 2015-31943.

25

Přítomnost separační i dočišťovací kolony v krocích a) a b) je důležitá pro spolehlivé odstranění radia od směsi aktinia a thoria. Zejména při dlouhodobém používání separační kolony se sorbentem může v důsledku radiční degradace sorbentu, atomovému odrazu dceřiných nuklidů a chemickým stopovým nečistotám docházet k vymývání aktinia a thoria spolu s radiem, ale druhé dělení na dočišťovací kolonce tento problém odstraňuje, a to i při dlouhodobém používání obou kolon.

30

Objasnění výkresů

35

Obrázek 1: Rozpadové schéma ²³⁵U.

Obrázek 2: Znázorňuje schematicky uspořádání kolon pro separaci Ac, Th, Ra (1 – zásobník elučního roztoku, 3 – separační kolonka, 5 – dočišťovací kolonka, 2, 4, 6 – ventily).

40

Obrázek 3: Porovnání gama spekter čisté frakce ²²³Ra a směsi ²²⁷Ac a ²²⁷Th zachycených na separační kolonce.

45

Obrázek 4: Porovnání alfa spekter čisté frakce ²²³Ra a směsi ²²⁷Ac a ²²⁷Th zachycených na separační kolonce.

Obrázek 5: a) Gama spektrum frakce ²²⁷Ac ihned po separaci – na úrovni přirozeného pozadí, b) Spektrum ²²⁷Ac po ustavení radioaktivní rovnováhy ²²⁷Ac/²²⁷Th/²²³Ra/²¹¹Pb měřeno po 1 roce od separace.

50

Obrázek 6: Gama spektrum čisté frakce ²²⁷Th ihned po separaci.

Příklady uskutečnění vynálezu

Metodika měření:

5

Aktivity eluovaných frakcí byly měřeny pomocí scintilačního studnového detektoru NaI(Tl) typu CII CRC-55tW (Capintec®). Jímány byly vždy frakce o elučním objemu (specifikováno u příkladu provedení vynálezu) do PE scintilačních lahvíček. Gama spektra jednotlivých frakcí byla měřena pomocí mnohokanálového analyzátoru (mnohokanálová vyrovnávací paměť Ortec 919 Spectrum Master, který je připojen k PC s řídicím programem MAESTRO) s koaxiálním polovodičovým detektorem, který je tvořen vysoce čistým krystalem germania HPGe (Princeton Gamma Technologies), se zdrojem vysokého napětí Camberra 2100, zabudovaným předzesilovačem a spektroskopickým zesilovačem Ortec 672 v rozmezí energií fotonů 0 až 2000 keV. Jednotlivé vzorky nebyly před měřením nijak upravovány. K měření alfa spekter byl využit alfa-spektrometrický systém Octete (Ortec, USA). Před samotným měřením byly vzorky naneseny příslušného alikvotu (10 µl) na kovovou podložku a odpařeny.

10

15

20

Měření ^{227}Ac se zpravidla (z důvodů nízké intenzity emitovaného záření) provádí nepřímě – aktivita byla stanovena z nárůstu aktivity dceřiného ^{227}Th , ^{223}Ra a ^{211}Pb v časovém odstupu aspoň 1 měsíc po separaci.

25

Pro všechny uvedené příklady byla jako modelový roztok zvolena směs $^{227}\text{Ac}/^{227}\text{Th}/^{223}\text{Ra}$, která má chemicky stejné vlastnosti jako $^{226}\text{Ra}/^{227}\text{Ac}/^{227}\text{Th}$.

30

Příklad 1: Separace ^{223}Ra od Ac/Th

35

40

45

50

55

Připraví se separační kolonka 3. 5 g sorbentu Dowex 1x8, 100 až 200 mesh v Cl⁻ cyklu se nechá bobtnat v 0,1M HNO₃, následně se převede do nitrátového cyklu ve směsi 0,7M HNO₃ a 80% methanolu. Sorbent se nanese na prázdnou plastovou nebo skleněnou kolonku o objemu cca 2,5 mL a promyje se cca 30 mL stejnou směsí, tím se připraví separační kolonka 3. Uspořádání experimentu je takové, že eluát ze separační kolonky 3 vstupuje přes připouštěcí a/nebo odvodňovací ventil 4 na dočišťovací kolonku 5 a z ní je jímán do připravených nádob. Zásobní roztok Ac, Th, Ra se převede do 0,7M HNO₃ v 80% methanolu a takto se nanese na separační kolonu 3 až do úplného vsáknutí, přičemž jsou sbírány jednotlivé frakce 0,5 až 1 ml. Eluce 0,7 M HNO₃ v 80% methanolu se provádí gravitační silou při laboratorní teplotě, ale s výhodou lze použít i peristaltické čerpadlo. Celkové ztráty Ra při první separaci na kolonce 3 a dočišťovací kolonce 5 nepřesahují 5 %. Na kolonkách zachycená směs Ac/Th se z iontoměniče vymyje 8M HNO₃.

60

Příklad 2: Čištění Ac od Th

65

70

75

80

85

90

95

100

105

110

115

120

125

130

135

140

145

150

155

Tento příklad je modelový a obdobně lze směs Ac a Th zachycenou na kolonkách v příkladu 1 přímo rozdělit změnou elučního roztoku na 8M HNO₃ a 0,5M HNO₃ po vymytí Ra.

Příklad 3: Čištění Ac od Th

5 1 g sorbentu polymerního nosiče s kovalentně vázaným komplexačním činidlem (TODGA) se nechá bobtnat v 0,1M HCl. Sorbent se nanese na prázdnou plastovou kolonku o objemu cca 1,5 mL a promyje se cca 30 mL 1M HCl. Uspořádání separace je takové, že eluát proudí přes kolonku a jsou jímány frakce. Vymyté frakce s obsahem Ac a Th po separaci Ra (odpařený eluát z příkladu 1) jsou rekonstruovány v 1 ml 1M HCl a jsou naneseny na kolonku až do úplného vsáknutí, přičemž jsou jímány frakce 0,5 až 1,5 ml. Eluce se provádí roztokem 1M až 10M minerálních kyselin, např. HNO₃ nebo HCl, gravitační silou při laboratorní teplotě, ale s výhodou lze použít i peristaltické čerpadlo. Z kolony se nejdříve eluuje Ac a následně pak s delším retenčním časem Th.

15

Průmyslová využitelnost

Postup přípravy a získání ²²⁷Ac z ozářených terčů ²²⁶Ra poskytuje aktinium v radiochemické a radionuklidové čistotě postačující pro využití ²²⁷Ac jak v radionuklidových generátorech pro získávání ²²³Ra pro účely nukleární medicíny, tak v průmyslových aplikacích jako např. výroba Ac-Be neutronových zdrojů nebo radionuklidových baterií pro využití v kosmonautice, popř. vojenství.

25

PATENTOVÉ NÁROKY

30 **1.** Způsob izolace Ac ze směsi radia, aktinia a thoria, **v y z n a ě u j í c í s e t í m**, že zahrnuje následující kroky:

a) směs Ra/Ac/Th se nanese na separační kolonu obsahující anex na bázi styrenu síťovaného divinylbenzenem, kde obsah síťovacího činidla je v rozsahu 5 až 50 %, výhodně 8 až 16 %, v nitrátovém cyklu a eluuje se elučním roztokem obsahujícím směs 0,6 až 0,8 M vodného roztoku kyseliny dusičné a methanolu v objemových poměrech roztok kyseliny dusičné:methanol = 30 : 70 až 10 : 90,

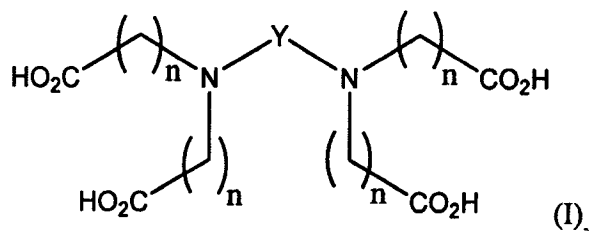
b) eluát ze separační kolony se provádí přes dočišťovací kolonu obsahující anex na bázi styrenu síťovaného divinylbenzenem, kde obsah síťovacího činidla je v rozsahu 5 až 50 %, výhodně 8 až 16 %, v nitrátovém cyklu a eluuje se elučním roztokem obsahujícím směs 0,6 až 0,8 M vodného roztoku kyseliny dusičné a methanolu v objemových poměrech roztok kyseliny dusičné:methanol = 30 : 70 až 10 : 90,

45 c) eluát z kroku b), obsahující ²²⁶Ra, se izoluje, s výhodou pro recyklaci pro opakované ozařování,

d) Ac a/nebo Th se ze separační i dočišťovací kolony vymyje elučním roztokem obsahujícím 5 až 10 M minerální kyselinu, s výhodou je minerální kyselinou HNO₃ a/nebo HCl, a popřípadě alespoň jedno komplexační činidlo vybrané ze skupiny zahrnující:

50

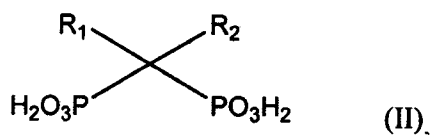
– polyaminokarboxylové kyseliny obecného vzorce I



přičemž n může být 1 až 5, Y může být ze skupiny obsahující C1 až C10 alkan-1,1-diyl, C2 až C10 alkan-1,2-diyl, C3 až C10 alkan-1,3-diyl, C2 až C10 alken-1,1-diyl, C2 až C10 alken-1,2-diyl, C3 až C10 alken-1,3-diyl, C2 až C10 alkyn-1,1-diyl, C2 až C10 alkyn-1,2-diyl, C3 až C10 alkyn-1,3-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,1-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,2-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,3-diyl, C6 až C10 ar-1,2-diyl, C6 až C10 ar-1,3-diyl, C3 až C10 heteroar-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroar-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P; a/nebo sole polyaminokarboxylových kyselin s Na⁺, K⁺, Mn²⁺, Ca²⁺, Zn²⁺, Fe³⁺, Cu²⁺;

– polyfosfonové kyseliny obecného vzorce II

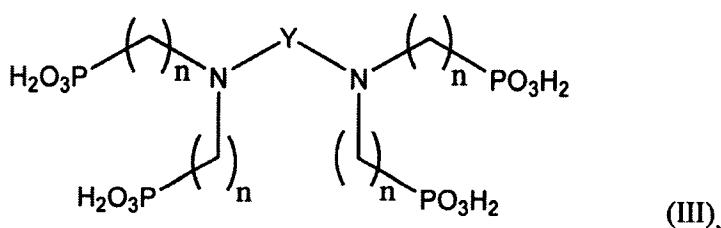
15



přičemž R1, R2 mohou být stejné nebo různé, vybrané ze skupiny zahrnující vodík, C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C1 až C10 heteroalkyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, hydroxyl, nitril, amin, halogenid (F, Cl, Br, I),

– polyfosfonové kyseliny obecného vzorce III

25



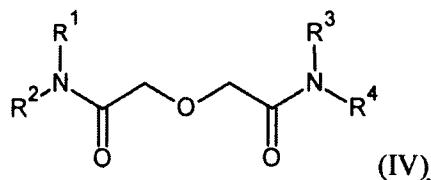
přičemž n může být 1 až 5, Y může být ze skupiny obsahující C1 až C10 alkan-1,1-diyl, C2 až C10 alkan-1,2-diyl, C3 až C10 alkan-1,3-diyl, C2 až C10 alken-1,1-diyl, C2 až C10 alken-1,2-diyl, C3 až C10 alken-1,3-diyl, C2 až C10 alkyn-1,1-diyl, C2 až C10 alkyn-1,2-diyl, C3 až C10 alkyn-1,3-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,1-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,2-diyl, C3 až C10 cykloalk-1,3-diyl, C6 až C10 ar-1,2-diyl, C6 až C10 ar-1,3-diyl, C3 až C10 heteroar-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroar-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,2-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocykl-1,3-diyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P;

– estery kyseliny fosforité s C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C1 až C10 heteroalkyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, hydroxyl, nitril, amin, halogenid (F, Cl, Br, I), s výhodou např. bis-(2-

40

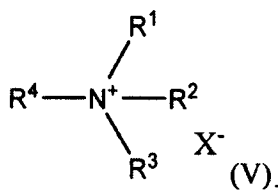
ethyl–hexyl)–fosforitou kyselinu (HDEHP); amino tris(methylenfosforitou) kyselinu (ATMP) a její estery s C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C1 až C10 heteroalkyl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, hydroxyl, nitril, amin, halogenid (F, Cl, Br, I),

– diglykolylamidy obecného vzorce IV



přičemž R1, R2, R3 mohou být stejné nebo různé, vybrané ze skupiny zahrnující vodík, C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, R4 symbolizuje zbytek molekuly polymerního nosiče nebo má stejný význam jako R1 až R3, výhodným diglykolylamidem je *N,N,N',N'*-tetraoktyldiglykolylamid (TODGA);

– kvartérní amoniové sole



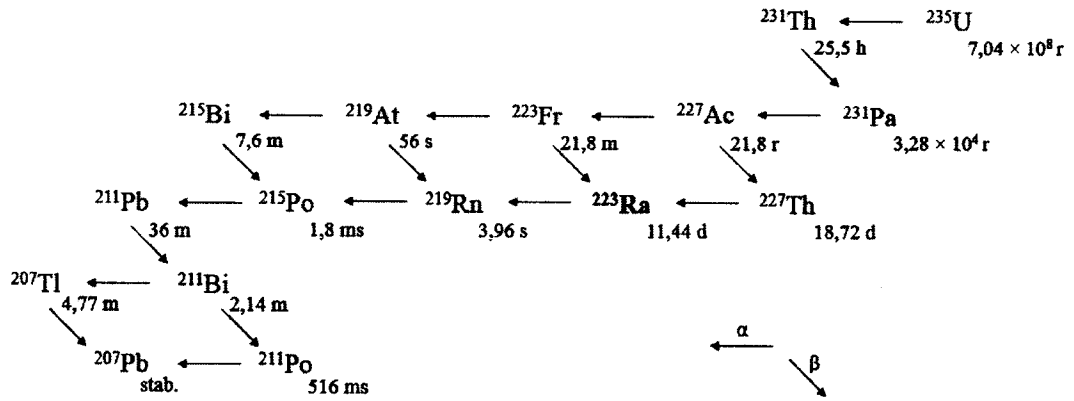
přičemž R1, R2, R3, R4 mohou být stejné nebo různé, vybrané ze skupiny zahrnující vodík, C1 až C10 alkyl, C6 až C10 aryl, C3 až C10 heteroaryl obsahující alespoň jeden heteroatom, C3 až C10 heterocyklyl obsahující alespoň jeden heteroatom, kde heteroatomy jsou vybrány ze skupiny zahrnující O, S, N, P, X může být Cl⁻, Br⁻ a I⁻, s výhodou např.: *N*-Methyl-*N,N,N*-trioktyl-amonium chlorid.

2. Způsob podle nároku 1, **v y z n a ě n ý t í m**, že je-li výstupem z kroku d) směs Ac a Th, nanese se tato směs na kolonu obsahující polymerní nosič obsahující komplexační činidlo, s výhodou je komplexační činidlo na polymerním nosiči kovalentně vázáno, a nanesená směs se eluuje 0,1 až 10 M minerální kyselinou, s výhodou vybranou ze skupiny zahrnující HNO₃ a/nebo HCl.

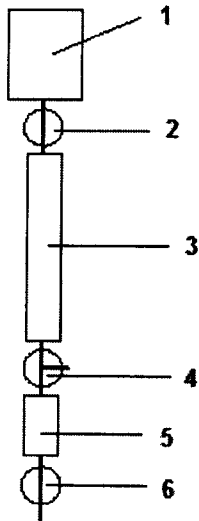
3. Způsob podle nároku 2, **v y z n a ě n ý t í m**, že separace směsi Ac a Th se provede na dvou za sebe zařazených kolonách, přičemž jedna z nich obsahuje polymerní nosič s kovalentně vázaným komplexačním činidlem a jedna z nich obsahuje anex.

3 výkresy

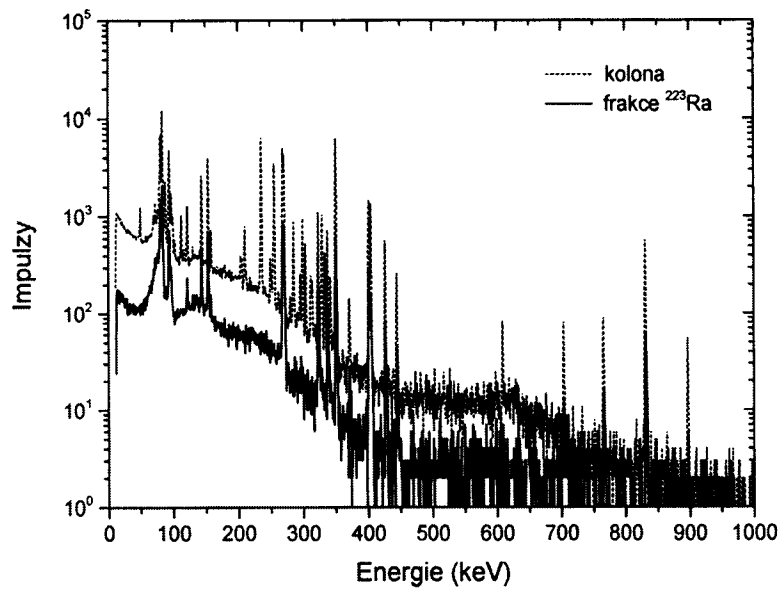
Obrázek 1 - Rozpadová řada ^{235}U



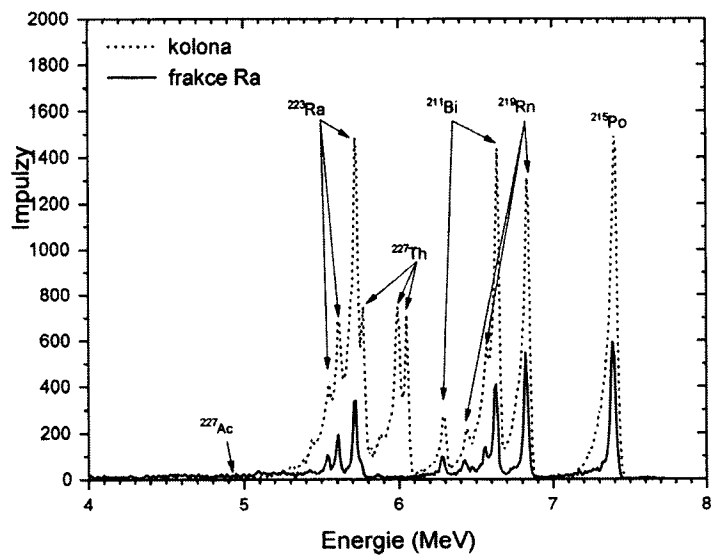
Obrázek 2 – Uspořádání separace pro Metodu 1A a 1B



Obrázek 3

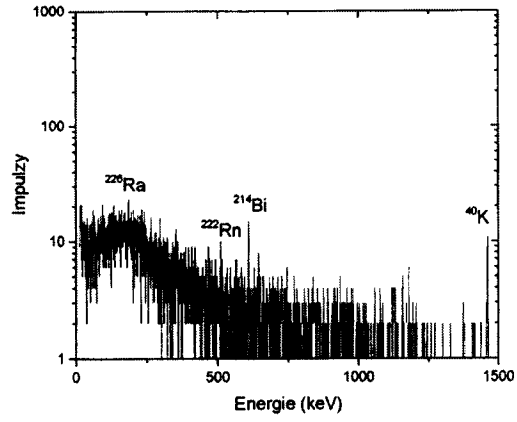


Obrázek 4

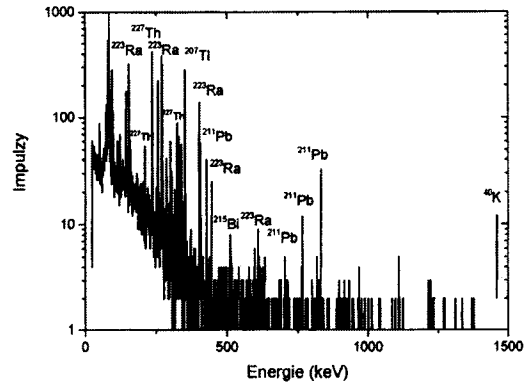


Obrázek 5

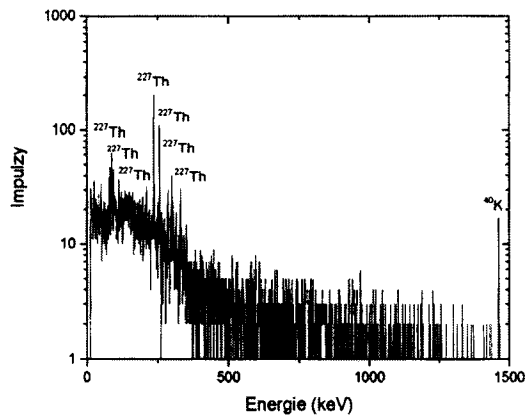
a)



b)



Obrázek 6



Konec dokumentu