УДК 551.77(571.1)

# ПОЛУЧЕНИЕ <sup>105</sup>Rh С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ УСКОРИТЕЛЕЙ ЭЛЕКТРОНОВ И НОВЫЙ СПОСОБ ЕГО ВЫДЕЛЕНИЯ ИЗ ОБЛУЧЕННЫХ МИШЕНЕЙ

© 2024 г. А. Г. Казаков<sup>а,\*</sup>, Ю. С. Бабеня<sup>а</sup>, Т. Ю. Екатова<sup>а</sup>, Е. Ю. Хворостинин<sup>а</sup>, С. С. Белышев<sup>а, б, в</sup>, А. А. Кузнецов<sup>а, б, в</sup>, В. Ханкин<sup>а, в</sup>, С. Е. Винокуров<sup>а</sup>, Б. Ф. Мясоедов<sup>а, г</sup>

<sup>a</sup>Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН, 119991, Москва, ул. Косыгина, д. 19; <sup>б</sup>Московский Государственный Университет им. М.В. Ломоносова, Физический факультет, 119991, Москва, Ленинские горы, 1c2

<sup>6</sup>Московский Государственный Университет им. М.В. Ломоносова, НИИЯФ им. Д.В. Скобельцына, 119991, Москва, Ленинские горы, 1c2

<sup>2</sup>Межведомственный центр аналитических исследований в области физики, химии и биологии РАН, 117997, Москва, ул. Профсоюзная, д. 64, стр. 6

\*e-mail: adeptak92@mail.ru

Получена 10.10.2023, после доработки 27.02.2024, принята к публикации 07.03.2024

Изотоп  $^{105}$ Rh является одним из перспективных бета-излучателей терапевтического назначения для ядерной медицины, но его применение до сих пор ограничивается его малой доступностью, что обуславливает поиск новых эффективных способов его получения. В нашей работе определён радионуклидный состав облучённой тормозными фотонами мишени из  $PdCl_2$  и разработан способ выделения из нее  $^{105}$ Rh без носителя с использованием коммерческого сорбента DGA, обеспечивающий высокую степень очистки целевого изотопа. Проведенные исследования будут способствовать практическому использованию  $^{105}$ Rh для решения проблем ядерной медицины.

**Ключевые слова:** родий-105, изотопы родия, фотоядерный метод, экстракционная хроматография, ускорители электронов, ядерная медицина

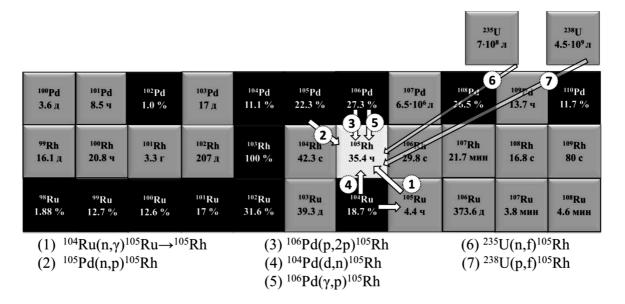
**DOI:** 10.31857/S0033831124030096

#### **ВВЕДЕНИЕ**

Изотоп  $^{105}$ Rh ( $T_{1/2}=35.4$  ч) — перспективный бета-излучатель для применения в терапии в ядерной медицине, также испускающий мягкие гамма-кванты с энергиями 319 и 306 кэВ (20 и 5% соответственно), что способствует его применению для целей тераностики. При наличии удобных ядерных свойств он также обладает уникальными химическими свойствами в сравнении со свойствами используемых на сегодняшний день медицинских изотопов, так как родий относится к благородным металлам. Так, комплексы Rh(III) обладают высокой кинетической устойчивостью в организме человека, что очень важно для их применения в радиотерапии [1].

Известно, что медицинские изотопы в основном нарабатываются в реакторах, на циклотронах или ускорителях электронов. Эффективный способ получения <sup>105</sup>Rh, а именно облучение <sup>104</sup>Ru в реакторе, был разработан ещё в конце 1980-х гг. [2], что открыло доступ к исследованиям с его соединени-

ями. Поиск хелаторов <sup>105</sup>Rh продолжался до начала 2000-х гг. [3-13], однако при этом получали изотоп только на исследовательском реакторе Университета Миссури (MURR), где и была впервые разработана технология получения и извлечения <sup>105</sup>Rh, за исключением работы [13], в ходе которой облучение проводили в реакторе Японского института атомной энергии (JAERI). Затем цели исследований стали фокусироваться на получении <sup>105</sup>Rh с использованием циклотронов [14-17] 106mAg, 100,101Pd. and 100g+m,101m,105g+mRh radionuclides through protoninduced reactions on natural palladium were measured up to 40 MeV by using a stackedfoil activation technique combined with high-resolution  $\gamma$ -ray spectrometry. The production cross-sections of 101Pd and 100g+m.105g+mRh radionuclides have been reported here for the first time from the natPd(p, x и ускорителей электронов [18] и на совершенствовании способов его выделения и очистки [19, 20], в то время как число работ по поиску хелаторов существенно снизилось [21]. Задачи настоящей работы состояли в получении и выделении изотопов родия.



**Рис. 1.** Известные подходы к получению  $^{105}$ Rh без носителя на фрагменте нуклидной карты. В чёрных клетках стабильные ядра и их содержание в естественной смеси, в серых — радиоактивные ядра и их  $T_{1/2}$ ; метастабильные ядра не отмечены.

поэтому мы не будем фокусироваться на его применении, примеры которого освещены в недавних обзорах [1, 22].

Разработанные методы получения <sup>105</sup>Rh без носителя, описанные в литературе, представлены на рис. 1. Как видно из этого рисунка, основной проблемой получения <sup>105</sup>Rh является наличие у ядер соседних элементов периодической таблицы по 6 стабильных изотопов в природной смеси. Это определяет необходимость использования мишеней из обогащённых по определённым изотопам рутения или палладия для получения <sup>105</sup>Rh с высокой радионуклидной чистотой. Основной способ (реакция (1), рис. 1) — это облучение мишеней из  $^{104}$ Ru тепловыми нейтронами ( $\sigma = 480 \text{ мб}$ ), в результате чего образуется  $^{105}$ Ru ( $T_{1/2} = 4.4$  ч), распадающийся в  $^{105}$ Rh, который затем извлекают путём отгонки летучего  $^{104}$ RuO<sub>4</sub> [2]. Известно также облучение <sup>nat</sup>Ru [13]; в этом случае единственным примесным изотопом родия является стабильный <sup>103</sup>Rh, образующийся по реакции  $^{102}$ Ru $(n, \gamma)^{103}$ Ru  $\rightarrow$   $^{103}$ Rh. Этот способ существенно дешевле, удельная активность целевого изотопа ниже, чем при облучении <sup>104</sup>Ru. В реакторе также возможно получение <sup>105</sup>Rh при облучении обогащённого <sup>105</sup>Pd быстрыми нейтронами (реакция (2), рис. 1) [1, 23]. Сечение данной реакции почти на три порядка ниже, и способ сегодня не находит развития. Можно также получить <sup>105</sup>Rh при облучении <sup>106</sup>Ru на циклотронах (реакции (3) и (4), рис. 1) и на ускорителях электронов (реакция (5), рис. 1), максимум сечения на циклотроне достигает 45 мб [24-27]; оба способа в настоящее время исследуются. Наконец, <sup>105</sup>Rh образуется при делении <sup>235</sup>U и <sup>238</sup>U [17] (реакции (6), (7), рис. 1, до 1 % от всех осколков деления), однако пока не

предпринимались попытки извлечь  $^{105}$ Rh из большого количества осколков деления урана.

На настоящее время получение медицинских изотопов на ускорителях электронов (или фотоядерным методом) используется всё активнее, так как, с одной стороны, стоимость получения изотопов этим способом ниже, чем в реакторе, с другой – число исследовательских реакторов в мире постепенно снижается [28]. Как следствие, использование ускорителей электронов рассматривают или как экономически обоснованную альтернативу реакторам и циклотронам (например, для получения <sup>47</sup>Sc, <sup>67</sup>Cu и <sup>99</sup>Мо), или как способ сделать медицинские изотопы доступнее для исследований с ними (например.  $^{177}$ Lu,  $^{44}$ Ti/ $^{44}$ Sc). В литературе описана только одна работа по получению <sup>105</sup>Rh на ускорителе электронов (реакция (5), рис. 1) [18] при энергии электронов 20-40 МэВ, где также показана экономическая выгодность данного метода. Так, согласно расчётам авторов, за 24 ч облучения 10 г мишени из металлического палладия током 1 мА при энергии 40 МэВ возможно наработать 20 ГБк <sup>105</sup>Rh, что соизмеримо с его производством в реакторах. При этом, на настоящий момент не предпринималось попыток выделения изотопов родия из облучённого палладия.

В развитие этого направления в настоящей работе нами исследован способ получения  $^{105}$ Rh на ускорителе электронов при энергии электронов 55 МэВ, определён изотопный состав облучённого  $PdCl_2$  и впервые разработан способ выделения  $^{105}$ Rh без носителя из облучённого палладия.

#### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

### Определение радионуклидного состава облучённого Pd

Облучения проводили на ускорителе электронов РТМ-55 МГУ им. М.В. Ломоносова с максимальной энергией тормозного спектра 55 МэВ [29]. Тормозными мишенями выступали вольфрамовые пластинки толщиной 1 мм, средний ток данного ускорителя составлял 100—200 нА.

В работе для определения радионуклидного состава облучённого Pd проводили облучение раствора Pd, содержащего также природный изотоп 197 Au (монитор тока ускорителя). Раствор для облучения готовили следующим образом. Металлическое золото массой 17,5 мг растворили в царской водке, довели объём раствора в мерной колбе до 50 мл, в результате получив раствор с содержанием золота 0,35 мг/мл. Навеску 270 мг PdCl<sub>2</sub> растворяли в 2 мл царской водки в стеклянном стакане, после чего переливали содержимое во флакон с крышкой объемом 5 мл, добавляли 1,14 мл полученного раствора золота и промывали стакан водой, добавляя промывные растворы во флакон. Полученный раствор для облучений содержал 160 мг Pd и 0,4 мг золота. Раствор облучали в течение 42 мин, после чего сразу же проводили регистрацию гамма-спектров с использованием гамма-спектрометра с детектором из высокочистого германия GC3019 (Canberra Ind, США). Идентификацию максимума пика в спектрах осуществляли с помощью разработанной нами автоматической системы регистрации и анализа спектров. В базу данных сохранялись спектры длительностью по 3.5 с каждый, а система анализа позволяла их суммировать и отображать суммарный спектр заданной длительности [30]. Прошедший заряд вычисляли, используя известное сечение реакции  $^{197}$ Au $(\gamma, n)^{196}$ Au, что позволило затем определить активности всех идентифицированных изотопов на момент конца облучения.

#### Разработка метода выделения <sup>105</sup>Rh

Для разработки метода выделения  $^{105}$ Rh использовали порошки PdCl<sub>2</sub>, облучаемые на ускорителе электронов, запечатанные в цилиндрические пластиковые контейнеры (масса в каждом случае около 1 г). Проводили несколько сеансов облучений длительностью от 4 до 7 ч, после чего облученные порошки извлекали из контейнеров и растворяли в растворе 2 М HCl для дальнейших исследований по выделению изотопов родия.

Выделение изотопов родия без носителя из раствора облученного  $PdCl_2$  проводили методом экстракционной хроматографии с использованием коммерческих сорбентов DGA-Normal и TEVA (TrisKem Int., Франция); основа — N,N,N',N'-тетраоктил-1,5-дигликольамид и четвертичная аммониевая соль Aliquat 336 соответственно; размер частиц 100-150 мкм. Предварительно определяли коэффициенты распределения  $K_d$  Rh(III) и Pd(II) на сорбенте TEVA и Pd(II) на сорбенте

DGA, в то время как известный  $K_d$  Rh(III) на DGA был взят из работы [31].

Для определения  $K_{\rm d}$  Rh(III) раствор, содержащий радиоактивные изотопы родия, выделенного с колонки, выпаривали досуха, затем растворяли в воде, после чего добавляли аликвоту полученного раствора к раствору HCl в пробирку типа Eppendorf, чтобы объём раствора составлял 1 мл, в которую затем вносили навеску сорбента. Пробирку перемешивали в течение 1 ч при 1100 об/мин, после чего пропускали раствор через фильтр, отбирали аликвоту водной фазы, смешивали её с 1 мл сцинтилляционного коктейля UltimaGold (Perkin Elmer Inc., США) и регистрировали скорость счёта на ЖС-спектрометре GreenStar (Россия).  $K_{\rm d}$  Rh(III) рассчитывали по формуле (1):

$$K_{\rm d} = \frac{I_0 - I_{\rm s}}{I_{\rm s}} \cdot \frac{V}{m},\tag{1}$$

где  $I_0$  — начальная скорость счёта раствора (имп/с),  $I_{\rm s}$  — скорость счёта раствора после сорбции (имп/с), V — объем раствора (мл), m — масса сорбента (г),  $K_{\rm d}$  — коэффициент распределения (мл/г). Содержание родия определяли на гамма-спектрометре с полупроводниковым детектором из высокочистого германия GC1020 (Сапбетга Ind., США).

Для определения  $K_{\rm d}$  Pd(II) на изучаемых сорбентах использовали раствор стабильного PdCl<sub>2</sub>. Для этого навеску PdCl<sub>2</sub> растворяли в растворе HCl необходимой концентрации в ультразвуковой ванне при нагревании в течение 30 мин, затем разбавляли до содержания палладия в растворе 0,015 мг/мл. Далее проводили сорбцию, как описано выше. Содержание Pd(II) в растворах до и после сорбции определяли на спектрофотометре Unicam UV-300 (Thermo Fisher, США) по линии 280 нм. Калибровку прибора проводили отдельно для каждой изучаемой среды.  $K_{\rm d}$  Pd(II) определяли по формуле (1), используя вместо скоростей счёта оптические плотности растворов до и после сорбции соответственно.

До выделения изотопов родия из облучённого палладия сорбенты предварительно выдерживали в растворе 1 М HCl в течение 1 ч, затем заполняли ими колонку объёмом 3 мл и диаметром 6 мм, промывали колонку 15 мл раствора 2 М HCl, после чего пропускали через неё полученный после облучения и растворения мишени раствор PdCl<sub>2</sub> в 2 М HCl. Собирали полученные фракции элюата по 1 мл, определяя содержание родия и палладия методом гамма-спектрометрии.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Радионуклидный состав облученного PdCl,

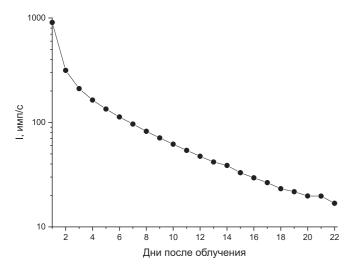
При исследовании радионуклидного состава облучённого  $PdCl_2$  методом гамма-спектрометрии обнаружены изотопы  $^{100,101}$   $^{100,103,109}$  Pd, активности которых на момент конца облучения и выходы

Изотоп	$\mathrm{E}_{\scriptscriptstyle{\gamma}}$ , кэ $\mathrm{B}$	Т <sub>1/2</sub> , ч	Основная реакция	Активность после облучения, кБк	Выход, кБк/(мкА·ч)
<sup>100</sup> Pd	84 (52%) 126 (8%)	87.1	$^{102}\mathrm{Pd}(\gamma,2\mathrm{n})$	0.1	2.9
<sup>101</sup> Pd	296 (19%) 270 (6%)	8.5	<sup>102</sup> Pd(γ, n)	5.3	151.4
<sup>109</sup> Pd	88 (4%)	13.7	<sup>110</sup> Pd(γ, n)	40	1142.9
<sup>100</sup> Rh	446 (12%) 540 (81%)	20.8	<sup>102</sup> Pd(γ, np)	0.08	2.3
<sup>105</sup> Rh	319 (20%)	35.4	<sup>106</sup> Pd(γ, p)	2.1	60.0
101mRh	545 (4%)	106.3	$^{102}\mathrm{Pd}(\gamma,2\mathrm{n})$	0.4	11.4

**Таблица 1.** Радионуклидный состав облученного раствора объемом 5 мл, содержащего 267 мг  $PdCl_2$ , активности и выходы полученных изотопов

соответствующих реакций представлены в табл. 1. Установлено, что при облучении 270 мг  $PdCl_2$  током 100 нА в течение 1 ч сумма выходов трёх изотопов родия составляет 73.7 кБк/(мкА·ч), из них выход целевого  $^{105}$ Rh составляет 60 кБк/(мкА·ч). Таким образом, содержание 105Rh составляет по активности 82%. Поэтому для получения  $^{105}$ Rh с большей радионуклидной чистотой необходимо использовать мишени, обогащённые по  $^{106}$ Pd.

Как видно из табл. 1, суммарная активность всей облучённой мишени определяется в основном активностью изотопов палладия (95% от общей активности), при этом  $T_{1/2}$  каждого изотопа не превышает 4.5 сут. Из полученной нами зависимости скорости счёта мишени от времени после облучения установлено, что уже через неделю скорость счёта составляет 11%, а через три недели — 2% от исходной. При этом  $PdCl_2$  легко может быть получен из элюата фракций палладия путём



**Рис. 2.** Суммарная скорость счета гамма-линий облученного  $PdCl_2$  в зависимости от времени после облучения

упаривания раствора до сухих солей. Это позволяет через месяц выдержки облучённой мишени повторно её использовать для наработки <sup>105</sup>Rh, что снижает сто-имость его регулярной наработки в случае использования обогащённой по <sup>106</sup>Pd мишени.

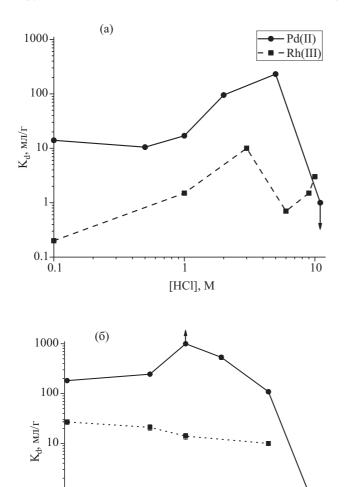
Таким образом, исследованный нами метод получения <sup>105</sup>Rh на ускорителях электронов при 55 МэВ позволяет достигать более высокого выхода целевого изотопа, чем при энергиях 20-40 МэВ. Так, согласно данным работы [18], при 40 МэВ нарабатывается 88 кБк целевого изотопа при облучении 50 мг Pd в течение 10 мин при токе 100 мкА, в то время как в нашей работе облучали 160 мг Pd при 55 МэВ в течение 42 мин при токе 100 нА, получив 2.1 кБк. Таким образом, при грубой оценке активность при одинаковом времени облучения, массе мишени и токе при 55 МэВ будет почти в два раза больше, чем при 40 МэВ. В этой же работе на основе определённых выходов <sup>105</sup>Rh показана возможность производства десятков ГБк <sup>105</sup>Rh на мощных ускорителях электронов. Таким образом, изученный нами способ получения изотопа <sup>105</sup>Rh медицинского назначения может быть конкурентной и целесообразной альтернативой его получению в реакторах и на циклотронах.

#### Выделение изотопов родия без носителя с использованием сорбентов DGA и TEVA

Родий является металлом платиновой группы (МПГ), который широко используется во многих отраслях [31]. В литературе отсутствуют данные о выделении следовых количеств родия из макроколичеств палладия, но в то же время описано большое количество способов совместного выделения МПГ из различного природного и техногенного сырья с их дальнейшим разделением, а также метод извлечения 105Rh из облучённого в реакторе <sup>104</sup>RuO<sub>4</sub>. Для первой цели в основном используется экстракция с применением трибутилфосфата или серосодержащих соединений [32—34],

0.1

0.1



**Рис.** 3.  $K_{\rm d}$  палладия на DGA (а) и палладия и родия на TEVA (б) в зависимости от концентрации растворов HCl.

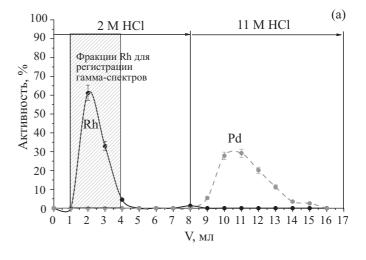
[HCl], M

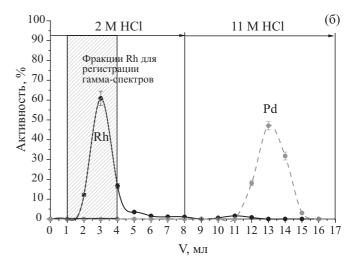
Pd(II)

10

·· Rh(III

а также ионообменная хроматография с использованием анионообменных смол Amberlite, Purolite и других [35, 36]. Стоит отметить, что при переработке растворов, содержащих МПГ, в том числе Pd и Rh, процесс разделения всегда включает последовательное выделение МПГ, в котором Rh остаётся в растворе на последней стадии разделения, будучи очищенным от остальных МПГ, так как количество соединений, селективно связывающих Rh, крайне мало. Известен единственный способ выделения <sup>105</sup>Rh для ядерной медицины после облучения в результате металлического <sup>104</sup>Ru, который растворяют, окисляют и отгоняют в форме <sup>104</sup>RuO<sub>4</sub>, в то время как <sup>105</sup>Rh остаётся в растворе [37]. Отмечена неполная очистка <sup>105</sup>Rh от материала мишени при его получении данным методом. В то же время известно, что для получения изотопов медицинского

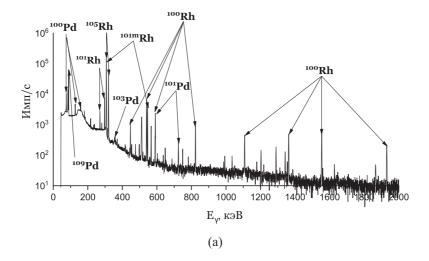




**Рис. 4.** Кривые элюирования палладия и родия на DGA (a), TEVA (б).

назначения с высокой степенью очистки от материала мишени применяется метод экстракционной хроматографии, поэтому при разработке способа выделения изотопов родия нами использовался данный подход.

Сорбент DGA, где нанесённым экстрагентом является дигликольамид, применяется преимущественно для разделения лантанидов и актинидов. При этом в работе [38] nitric plus hydrofluoric, and hydrochloric acids on Eichrom TODGA extraction chromatography resin. The Kds are used to devise a multi-element extraction scheme for high-precision elemental and isotopic analyses of Ca, Hf, Lu, Th and U in geological materials, using highpurity lithium metaborate (LiBO2 показано, что родий не удерживается на сорбенте DGA в растворах HCl ( $K_d \le 10$ ). В то же время основанный на четвертичном амине сорбент TEVA успешно используется в настоящее время для разделения четырехвалентных актинидов и технеция [39, 40], а палладий, как показано в работе [41], также эффективно сорбируется на анионообменных



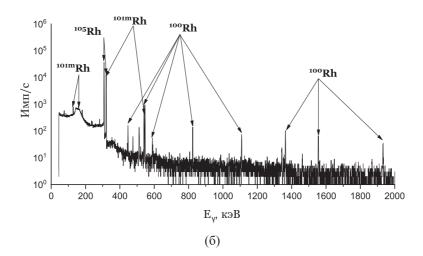


Рис. 5. Гамма-спектры облученного PdCl<sub>2</sub> (а) и фракций родия после извлечения на DGA (б).

сорбентах. В настоящей работе нами определены  $K_{\rm d}$  палладия на сорбентах DGA и TEVA, а также родия на сорбенте TEVA, результаты представлены на рис. 2, где также приведены значения Kd родия на DGA, взятые из работы [38].

При изучении  $K_{\rm d}$  палладия на DGA (рис. 2a) установлено, что в диапазоне концентраций HCl от 0.1 до 1 М палладий слабо удерживается сорбентом ( $K_{\rm d}$  около 10), но при дальнейшем увеличении концентрации кислоты до 5 М  $K_{\rm d}$  возрастает до значений около 250 и затем снижается до значений ниже 1 в 11 М HCl, что, вероятно, объясняется конкуренцией хлорид-ионов с анионными хлоридными комплексами палладия за связывание с сорбентом.

При изучении  $K_{\rm d}$  родия и палладия на TEVA (рис. 26) установлено, что родий умеренно удерживается сорбентом во всем диапазоне изученных концентраций HCI ( $15 \le K_{\rm d} \le 40$ ), так как не склонен к образованию анионных комплексов в данных средах. В то же время  $K_{\rm d}$  склонного к образованию таких

комплексов палладия в растворе  $0.1\,\mathrm{M}$  HCl составил около 200, возрастая при повышении кислотности до  $1\,\mathrm{M}$  до значений больше 1000, после чего снижался до  $100\,\mathrm{npu}$  5 M и резко снижался затем до значений  $<1\,\mathrm{B}$  растворе  $11\,\mathrm{M}$  HCl, что, вероятно, как и в случае с DGA, объясняется конкуренцией с хлорид-ионами.

Извлечение изотопов родия из облучённого PdCl<sub>2</sub> на изучаемых сорбентах проводили путём растворения PdCl<sub>2</sub> в 2 М HCl и пропускания раствора через колонку. При этом в случае как с DGA, так и с TEVA родий частично сорбировался на колонках, а палладий сорбировался полностью. Колонки затем промывали раствором 2 М HCl до полного удаления родия, после чего промывали их раствором 11 М HCl для десорбции палладия; кривые элюирования представлены на рис. 3. Из данных на рис. 3а видно, что почти весь родий быстро десорбируется с колонки при пропускании раствора 2 М HCl, при этом при смене среды около 2% родия выходит в первой фракции элюата, после чего количественно десорбируется палладий. Это может быть связано как с существованием различных форм

родия в растворе, так и с тем, что палладий как макро-компонент частично выступает неизотопным носителем родия. Из данных на рис. Зб видно, что родий медленно десорбируется с колонки TEVA, в связи с чем не удаётся достичь полного разделения палладия и родия на данном сорбенте.

Для определения степени очистки родия от палладия регистрировали гамма-спектр фракций, обозначенных на рис. 3, в течение 24 ч. Спектры облучённого РdCl<sub>2</sub> и фракций родия, полученных с использованием DGA для извлечения родия, представлены для сравнения на рис. 4. Установлено, что при использовании сорбента DGA в спектре фракций родия отсутствовали пики изотопов палладия (рис. 4б), а коэффициент разделения Рd/Rh составлял не менее 10<sup>5</sup>. В то же время во фракциях родия, выделенного на TEVA, пики палладия присутствовали, и коэффициент разделения не превышал 10<sup>3</sup>.

Таким образом, показано, что оптимальным способом выделения  $^{105}$ Rh является использование сорбента DGA. При этом в работе впервые разработан простой и удобный способ извлечения изотопов родия без носителя из облучённого палладия, а использование экстракционной хроматографии для этого будет удобно для регулярного применения в практике. Выделенный с колонки раствор, содержащий палладий в HCl, может быть упарен для получения  $PdCl_2$  для повторного облучения, что снижает стоимость продукта и минимизирует количество образующихся радиоактивных отходов.

В заключение можно отметить, что одной из уникальных особенностей <sup>105</sup>Ru является то, что его экономически выгодное производство возможно как в реакторе, так и на циклотронах и на ускорителях электронов, как показано нами в настоящей работе. Подчеркнем, что нами впервые разработан способ получения <sup>105</sup>Rh на ускорителе электронов при энергии 55 МэВ и его выделения из облучённого палладия с использованием коммерческого сорбента, обеспечивающий его высокую степень очистки от палладия — материала мишени. Оптимальным способом выделения <sup>105</sup>Rh является использование коммерческого сорбента DGA-Normal (Triskem, 100–150 мкм); при этом облучённый PdCl<sub>2</sub> следует растворить в 2 М HCl, пропускать через колонку, элюируя раствором 2 М НС1 до полной десорбции <sup>105</sup>Rh, после чего десорбировать палладий раствором 11 М НСІ.

#### ФОНДОВАЯ ПОДДЕРЖКА

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда no. 21-13-00449, https://rscf.ru/project/21-13-00449/.

#### КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Boros E., Packard A.B. // Chem. Rev. 2019. Vol. 119. N2. P. 870–901.
- Grazman B. // Int. J. Radiat. Appl. Instr. A. 1988. Vol. 39. N3. P. 257–260.
- 3. *John C.S., Pillai M.R.A., Lo J.M., Troutner D.E.* // Int. J. Radiat. Appl. Instr. A. 1989. Vol. 40. N8. P. 701–705.
- 4. *Lo J.M.*, *Pillai M.R.A.*, *John C.S.*, *Troutner D.E.* // Int. J. Radiat. Appl. Instr. A. 1990. Vol. 41. N1. P. 63–67.
- Pillai M.R. A., Lo J.M., John C.S., Troutner D.E. // Int. J. Rad. Appl. Instr. A. 1990. Vol. 17. N4. P. 419–426.
- 6. Li N., Eberlein C.M., Volkert W.A., Ochrymowycz L., Barnes C., Ketring A.R. // Radiochim. Acta. 1996. Vol. 75. N2. P. 83–95.
- 7. Venkatesh M., Goswami N., Volkert W.A., Schlemper E.O., Ketring A.R., Barnes C.L., Jurisson S. // Nucl. Med. Biol. 1996. Vol. 23. N1. P. 33–40.
- 8. *Jurisson S.S.*, *Ketring A.R.*, *Volkert W.A.* // Transit. Met. Chem. 1997. Vol. 22. N3. P. 315–317.
- 9. Li N., Struttman M., Higginbotham C., Grall A.J., Skerlj J.F., Vollano J.F., Bridger S.A., Ochrymowycz L.A., Ketring A.R., Abrams M.J., Volkert W.A. // Nucl. Med. Biol. 1997. Vol. 24. N1. P. 85–92.
- 10. Venkatesh M., Schlemper E.O., Jurisson S., Ketring A.R., Volkert W.A., Corlija M. // Radiochim. Acta. 1999. Vol. 85. N3–4. P. 157–164.
- 11. Brooks R.C., Carnochan P., Vollano J.F., Powell N.A., Zweit J., Sosabowski J.K., Martellucci S., Darkes M.C., Fricker S.P., Murrer B.A. // Nucl. Med. Biol. 1999. Vol. 26. N4. P. 421–430.
- Goswami N., Higginbotham C., Volkert W., Alberto R., Nef W., Jurisson S. // Nucl. Med. Biol. 1999. Vol. 26. N8. P. 951–957.
- 13. Ando A., Ando I., Tonami N., Kinuya S., Okamoto N., Sugimoto M., Fukuda N., Matsumoto S. // Appl. Radiat. Isot. 2000. Vol. 52. N2. P. 211–215.
- 14. *Khandaker M.U., Kim K., Kim G., Otuka N.* // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B: Beam Interact. Mater. At. 2010. Vol. 268. N14. P. 2303–2311.
- 15. Khandaker M.U., Kim K., Lee M., Cho Y.S., Lee Y.O., Kim G. // Trans. Korean Nucl. Soc. Spring Meet. Gyeongju, Korea, May 29–30, 2008. P. 147–148.
- 16. *Khandaker M.U., Kim K., Kim G.* // Pramana J. Phys. 2012. Vol. 79. N2. P. 243–248.
- 17. Najumunnisa T., Musthafa M.M., Midhun C.V., Aslam M., Rajesh K.K., Surendran P., Nair J.P., Shanbhag A., Ghugre S. // Nucl. Phys. A. 2023. Vol. 1032. Article 122611.
- 18. Inagaki M., Sekimoto S., Tanaka W., Tadokoro T., Ueno Y., Kani Y., Ohtsuki T. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2019. Vol. 322. N3. P. 1703–1709.
- 19. *Unni P.R.*, *Pillai M.R.A.* // Radiochim. Acta. 2002. Vol. 90. N6. P. 363—369.
- 20. Okoye N.C., Phelps T.E., Charles A., McCormick J.B., Wycoff D.E., Lydon J.D., Embree M.F., Guthrie J.,

- Kelley S.P., Barnes C.L., Ketring A.R., Hennkens H.M., Jurisson S.S. // Appl. Radiat. Isot. 2021. Vol. 176. Article 109847.
- 21. *Krajewski S., Bilewicz A.* // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2010. Vol. 285. N2. P. 293–300.
- 22. Feng Y., Phelps T.E., Carroll V., Galazzi F., Sieckman G., Hoffman T.J., Barnes C.L., Ketring A.R., Hennkens H.M., Jurisson S.S. // Dalton Trans. 2017. Vol. 46. N42. P. 14677–14690.
- 23. Jia B.W., Ma D., Volkert E.W., Ketring A.R., Ehrhardt G.J., Jurisson S.S.// Platin. Met. Rev. 2000. N2. P. 50–55.
- 24. Herman M., Marcinkowski A., Bielewicz J., Oblozinsky P. // Nucl. Phys. A. 1978. Vol. 297. P. 335–346.
- 25. Tarkanyi F., Ditroi F., Takacs S., Hermanne A., Ignatyuk A.V., Spahn I., Spellerberg S. // Appl. Radiat. Isot. 2021. Vol. 168. Article 109401.
- Khandaker M.U., Kim K., Lee M., Kim K. // Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B: Beam Interact. Mater. At. 2008. Vol. 266. N22. P. 4877–4887.
- 27. *Panikkath P.* // Appl. Radiat. Isot. 2019. Vol. 153. Article 108819.
- 28. *Kazakov A.G., Ekatova T.Y., Babenya J.S.* // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2021. Vol. 328. N2. P. 493–505.
- 29. Ermakov A.N., Ishkhanov B.S., Kamanin A.N., Pakhomov N.I., Khankin V.V., Shvedunov V.I., Shvedunov V.I., Zhuravlev E.E., Karev A.I., Sobenin N.P.// Instrum. Exp. Tech. 2018. Vol. 61. N2. P. 173–191.

- 30. *Belyshev S.S.*, *Stopani K.A.* // Moscow Univ. Phys. Bull. 2013. Vol. 68. N1. P. 88–91.
- 31. *Nguyen T.H.*, *Sonu C.H.*, *Lee M.S.* // Hydrometallurgy. 2016. Vol. 164. P. 71–77.
- 32. *Zhang C., Huang K., Yu P., Liu H.* // Sep. Purif. Technol. 2013. Vol. 108. P. 166–173.
- 33. *Gupta B.*, *Singh I.* // Hydrometallurgy. 2013. Vol. 134–135. P. 11–18.
- 34. *Gupta B., Singh I., Mahandra H.* // Sep. Purif. Technol. 2014. Vol. 132. P. 102–109.
- 35. *Gaita R., Al-Bazi S.J.* // Talanta. 1995. Vol. 42. N2. P. 249–255.
- 36. *Rovira M., Cortina J.L., Amaldos J., Sastre A.M.* // Solvent Extr. Ion Exch. 1998. Vol. 16. N5. P. 1279—1302.
- 37. Okoye N.C., Phelps T.E., Charles A., McCormick J.B., Wycoff D.E., Lydon J.D., Embree M.F., Guthrie J., Kelley S.P., Barnes C.L., Ketring A.R., Hennkens H.M., Jurisson S.S. // Appl. Radiat. Isot. 2021. Vol. 176. Article 109847.
- 38. *Pourmand A., Dauphas N. //* Talanta. 2010. Vol. 81. N3. P. 741–753.
- 39. *Zhang Z.L.*, *Zhou G.Q.*, *Lin J.F.*, *Ma Y.*, *Yi X.W.* // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2017. Vol. 314. N1. P. 161–166.
- 40. *Yokoyama T., Makishima A., Nakamura E.* // Anal. Chem. 1999. Vol. 71. N1. P. 135–141.
- 41. *Makishima A., Nakanishi M., Nakamura E.* // Anal. Chem. 2001. Vol. 73. N21. P. 5240–5246.

## Production of <sup>105</sup>Rh Using Electron Accelerators and a New Method for Its Separation from Irradiated Targets

A. G. Kazakov<sup>a</sup>\*, Yu. S. Babenya<sup>a</sup>, T. Yu. Ekatova<sup>a</sup>, E. Yu. Khvorostinin<sup>a</sup>, S. S. Belyshev<sup>a, b, c</sup>, A. A. Kuznetsov<sup>a, b, c</sup>, V. V. Khankin<sup>a, c</sup>, S. E. Vinokurov<sup>a</sup>, and B. F. Myasoedov<sup>a, d</sup>

<sup>a</sup> Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, Russian Academy of Sciences, ul. Kosygina 19, Moscow, 119991 Russia

b Physical Department, Moscow State University, Leninskie gory 1, str. 2, Moscow, 119991 Russia
c Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Moscow State University, Leninskie gory 1, str. 2, Moscow, 119991 Russia
d Interdepartmental Center for Analytical Research in Physics, Chemistry and Biology, Russian Academy of Sciences, ul. Profsoyuznaya 64, str. 6, Moscow, 117997 Russia
\*e-mail: adeptak92@mail.ru

Received October 10, 2023; revised February 27, 2024; accepted March 7, 2024

<sup>105</sup>Rh is one of the promising beta-emitters for therapeutic purposes for nuclear medicine, but its use is limited, among other things, by its low availability, which necessitates the search for new effective ways to obtain it. In this work, the radionuclide composition of a PdCl<sub>2</sub> target irradiated by bremsstrahlung photons is determined and a method is proposed for recovery <sup>105</sup>Rh from it without a carrier using a commercial DGA sorbent, which ensures a high degree of purification of the target isotope. The studies carried out in the future may contribute to the practical use of <sup>105</sup>Rh for nuclear medicine.

**Keywords:** rhodium-105, rhodium isotopes, photonuclear method, extraction chromatography, electron accelerators, nuclear medicine