

12 **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

21 Anmeldenummer: 87102017.8

51 Int. Cl.³: **G 21 G 4/08**

22 Anmeldetag: 13.02.87

30 Priorität: 15.05.86 DE 3616391

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
19.11.87 Patentblatt 87/47

84 Benannte Vertragsstaaten:
BE DE FR GB

71 Anmelder: **Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH**
Weberstrasse 5 Postfach 3640
D-7500 Karlsruhe 1(DE)

72 Erfinder: **Bürck, Jochen**
Sézannerstr. 74
D-7502 Malsch(DE)

72 Erfinder: **Abdel Hadi Ali, Sameh, Dr.**
Zellmarckstr. 7
D-7505 Ettlingen(DE)

54 **Verfahren zur Feinreinigung von Spaltmolybdän.**

57 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Feinreinigung von Spaltmolybdän, gelöst in anionischer Form gemeinsam mit Anionen der Spaltprodukte des J, Sn, Ce, Ru und Zr in wäßriger mineralisauerer Lösung, bei welchem

a) in einem Sorptionsschritt das Spaltmolybdän an einem Metalloxid fixiert und

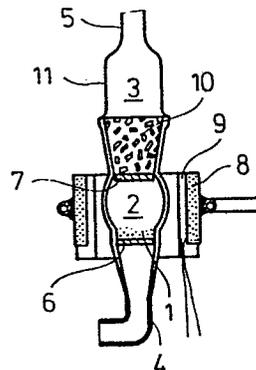
b) in einem Desorptionsschritt wieder freigesetzt wird.

Mit der Erfindung soll ein Verfahren geschaffen werden, welches unter erschwerten Arbeitsbedingungen weitgehend störunanfällig, sicher, mit geringerem Aufwand an Betriebszeit, Betriebsapparatur und Handhabungstechnik durchgeführt werden kann und ein hochreines Mo-99-Produkt bei gleichzeitig verringertem Volumen an radioaktivem Abfall liefert.

Dies wird dadurch erreicht, daß die wäßrige Lösung zur Sorption der Anionen des Mo, J, Ce, Ru, Sn, und Zr über ein amphoterer Oxid geleitet wird, das beladene Oxid getrocknet wird und danach zur Sublimation des Mo auf eine Temperatur im Bereich von 1200° C bis 1300° C erhitzt und gleichzeitig mit einem Wasserdampf enthaltenden Trägergasstrom beaufschlagt wird,

durch Abkühlung auf eine Temperatur unterhalb 600° C das Mo aus dem Trägergasstrom desublimiert wird und der hierdurch entstehende Mo-Rückstand nach weiterer Abkühlung auf Raumtemperatur in einer wäßrigen Lösung einer starken Alkalie aufgelöst und in eine Molybdät-Lösung überführt wird.

Fig. 1



Verfahren zur Feinreinigung von Spaltmolybdän

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Feinreinigung von Spaltmolybdän, gelöst in anionischer Form gemeinsam mit Anionen der Spaltprodukte des J, Sn, Ce, Ru und Zr in wäßriger mineralsauerer Lösung, bei welchem

- a) in einem Sorptionsschritt das Spaltmolybdän an einem Metalloxid fixiert und
- b) in einem Desorptionsschritt wieder freigesetzt wird.

10

Aufgrund seiner Eigenschaften wird das radioaktive, verhältnismäßig kurzlebige Nuklid Technetium-99m in der Nuklearmedizin verwendet. Hierzu wird es möglichst kurzzeitig vor seiner Anwendung aus dem Mutternuklid/Tochter-nuklid-Gleichgewicht als Tochter von Molybdän-99 abgetrennt. Die Herstellung des Mutternuklids Mo-99 ist bekannt. Beispielsweise wird aus einer Uran-Aluminium-Legierung der ungefähren Zusammensetzung UAl_3 , die wegen der oft unterschiedlichen Aluminiumanteile meist mit UAl_x bezeichnet wird, nach einer fünf- bis zehntägigen Neutronenbestrahlung in einem Kernreaktor unter Zwangskühlung und nach einer anschließenden ca. eintägigen Abkühlzeit des UAl_3 -Targets das Mo-99 nach einer Reihe von chemischen Verfahrensschritten gewonnen. Hierbei werden die Target-Platten beispielsweise in drei- bis sechs-

25 molarer Natronlauge gelöst, wobei außer der alkalischen Lösung ein fester Rückstand und Abgas entstehen. Im Abgas sind außer Wasserstoff und Stickstoff-Trägergas u.a. Xe-133, Xe-135, Kr-85 und J-131 vorhanden. Im festen Rückstand finden sich UO_2 und $Na_2U_2O_7$. Die Lösung enthält Aluminium-Ionen

30 und Spaltproduktionen, wie z. B. Ionen der Alkali- und Erdalkali-Metalle, sowie von Jod, Zinn und Molybdän und geringere Mengen von Ionen schwerlöslicher Elemente wie Cer, Ruthenium und Zirkonium. Die vom Rückstand abgetrennte alkalische Lösung wird dann mehreren Sorptions-, Wasch- und

Elutionsschritten unterworfen, wobei als Sorptionsmittel
zunächst verschiedene organische Austauschharze Verwendung
finden. Durch diese Prozedur wird das Molybdän-99 bereits
weitgehend von den anderen gelöst vorliegenden Spaltprodukt-
5 Ionen dekontaminiert. Da jedoch eine wichtige Voraussetzung
für die Nutzung des Molybdän-Endproduktes und seines Toch-
ternuklids Technetium-99m deren Reinheit ist, sind weitere
Reinigungsschritte erforderlich.

10 Diese weitere als Feinreinigung bezeichnete Verfahrensfüh-
rung wurde bisher beispielsweise wie folgt durchgeführt:

- 15 a) die durch Elution des letzten organischen Ionenaustau-
schers erhaltene alkalische Lösung wurde mit Mineral-
säure auf pH ca. 2 angesäuert,
- b) über ein saures Aluminiumoxid zur Sorption des Molyb-
dän-99 geleitet,
- 20 c) das beladene Al_2O_3 gewaschen und anschließend mit Am-
moniaklösung eluiert,
- d) ca. 2 bis 3 l der ammoniakalischen Elutionslösung
25 eingedampft auf ca. 2 bis 3 ml konzentrierte Lösung,
- e) die konzentrierte Lösung in einen Platintiegel über-
führt und darin zur Trockne eingedampft, der Tiegel in
eine Verflüchtigungsapparatur überführt und anschlies-
send auf eine Temperatur bis zu ca. 600° C erhitzt zum
30 vollständigen Austreiben aller Ammoniumsalze und orga-
nischen Resten bzw. Verunreinigungen, beispielsweise
von den organischen Austauscherharzen, von Kunststoff-
schläuchen und -Ventilen,
- 35 f) der Rückstand aus e) zur Molybdän-99-Sublimation aus dem
Platintiegel hochoverhitzt auf ca. 900° bis 1000° C,

- 3 -

g) außerhalb der Heizzone das ^{99}Mo -oxid desublimiert,

h) nach Erkalten mit Natronlauge gelöst.

5 Diese zum Stande der Technik gehörige Verfahrensweise ist nicht nur umständlich und zeitraubend. Da das Verfahren unter starker Strahlenabschirmung durchgeführt werden muß, entstehen mit der Fernbedienung manipulationsintensive Ver-
10 fahrensschritte außer dem zeitraubenden Eindampfschritt, bei welchem stets die Gefahr des Überschäumens nicht ausgeschlossen werden kann.

Aufgabe der Erfindung ist es daher, ein Verfahren zur Fein-
15 reinigung von Molybdän-99 (Spaltmolybdän) zu schaffen, welches unter den erschwerenden Arbeitsbedingungen weitgehend störunanfällig, sicher, mit geringerem Aufwand an Betriebszeit, Betriebsapparatur und Handhabungstechnik durchgeführt werden kann und ein hochreines Mo-99-Produkt bei gleichzeitig verringertem Volumen an radioaktivem Abfall liefert.

20 Die Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch die in den Kennzeichen der Ansprüche 1 oder 6 aufgeführten Maßnahmen. Vorteilhafte Ausbildungen des erfindungsgemäßen Verfahrens sind in den Kennzeichen der Unteransprüche 2 bis 5 auf-
25 führt.

Die Durchführung des Desorptionsschrittes des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt in einer Vorrichtung, wie sie in den Kennzeichen der Ansprüche 7 bis 10 beschrieben ist.

- 4 -

Zwar wurde eine Anlage und ein Verfahren zur Feinreinigung von Spaltnolybdän, bei welchem Mo-99 an saurem Al_2O_3 sorbiert und zum Teil von anderen Spaltprodukt-Anionen abgetrennt wird, in Kernenergie 28 (1985), Heft 8, Seiten 352 bis 354 beschrieben, doch wird dort folgender Verfahrensgang durchgeführt:

- Aufkonzentrieren von 20 l Mo-99-haltigem ammoniakalischem Eluat auf 400 ml
- 10 - Einstellen dieses Rohkonzentrates auf 0,1 M HNO_3
- Überleiten der angesäuerten Lösung über saures Al_2O_3
- Eluieren des Mo-99 vom Al_2O_3
- Ansäuern des Eluats und Verteilen auf Quarzglaskolben
- Eindampfen der Lösungen in den Quarzglaskolben zur Trockne
- 15 nach dem Rotationsverdampferprinzip
- Erhitzen der Kolben im Hochtemperaturofen auf 1000°C zur Sublimierung des entstandenen Mo-99-Oxids und
- Auflösen des Sublimats nach Abkühlung in verdünnter Natronlauge.

20

Je Sublimationskolben wird eine Trägermenge an inaktivem Molybdat in Form von $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}$ zur vollständigeren Sublimation des Mo-99 zugegeben, die 40 mg Mo je Sublimationskolben nicht überschreiten soll. In der genannten Druckschrift wird erwähnt, daß eine direkte Sublimation der Mo-99-Aktivität vom Al_2O_3 nicht möglich sei.

Es wurde nun festgestellt, daß die Sorption von Molybdän-99-Ionen aus einer wäßrigen, Molybdän und andere Spaltprodukte enthaltenden Lösung an amphoteren Metalloxiden im erfindungsgemäßen Feinreinigungsverfahren weitgehend pH-unabhängig erfolgen kann:

an Al_2O_3 aus Lösungen mit pH 0,5 bis pH 8

35

an SnO_2 aus Lösungen von pH 0 bis ca. pH 4.

- 5 -

Weitere besondere Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens sind

- 5 - die Zugabe an inaktivem Trägermolybdat zur angesäuerten Ausgangslösung vor der Sorption am amphoteren Oxid kann eingeschränkt werden auf 2 bis 3 mg Mo pro Gramm zur Verwendung kommenden Metalloxid
- 10 - hierdurch wird eine höhere spezifische Aktivität auf dem Sorptionsmittel Ci/g erreicht
- 15 - die direkte Sublimierung des Mo-99-Oxids vom Sorptionsmittel verkürzt die Betriebsdauer gegenüber einer Elution von der Al_2O_3 -Säule mit wäßriger Ammoniaklösung, Eindampfen des Eluats und Sublimierung des Mo-99-Oxids aus dem Trockenrückstand beträchtlich
- 20 - die Vereinfachung der Handhabungstechnik bringt Sicherheit und ebenfalls Zeitersparnis mit sich
- eine zusätzliche Dekontamination des Endprodukts gewährleistet eine gute Qualität auch bei auftretenden Störungen
- 25 - im Falle eines Durchbruchs von Verunreinigungen durch die letzte Kolonne mit organischem Ionenaustauscherharz wird eine ausreichende Dekontamination des Mo-99 und eine ausreichende Qualität des Endprodukts gewährleistet.

Im folgenden wird das erfindungsgemäße Verfahren anhand von
30 beispielhaften Sorptions- und Desorptions-Versuchen mit verschiedenen amphoteren Metalloxiden und mit wäßrigen, Mo-99-Indikator-haltigen Simulat-Lösungen nichtradioaktiver Trägerionen der Species, die im echten angesäuerten Eluat des letzten organischen Ionenaustauschers vorhanden sind, näher
35 beschrieben und die Resultate in Verbindung mit den Figuren

- 6 -

veranschaulicht. Dabei ist zu beachten, daß die Anwendung des Verfahrens auf echte Eluate im radioaktiven Betrieb eine Verbesserung der Feinreinigung des Mo-99 bzw. eine Erhöhung der Dekontaminationsfaktoren im Hinblick auf die verunreinigenden Spaltnuklide gegenüber den Dekontaminationsfaktoren, die die aufgeführten Versuche erbrachten, erwarten läßt.

Die Konzentrationen der in den Sorptions- und Desorptionsexperimenten untersuchten Elemente entsprachen solchen im bekannten Spaltnuklidmolybdän-99-Separationsprozeß auftretenden Molaritäten (10^{-5} - 10^{-3} Mol/l) von Spaltprodukten, wenn aufgrund von Prozeßstörungen in den vorhergehenden chromatographischen Trennschritten (Vorreinigung) ein vollständiger Aktivitätsdurchbruch bis zu den abschließenden Feinreinigungsmaßnahmen des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgen würde. Hinsichtlich einer zusätzlichen Mo-Dekontamination mittels des beschriebenen Verfahrens wurden also die ungünstigsten Bedingungen in Bezug auf die Anwesenheit anderer Spaltprodukte gewählt. Bei den im Routinebetrieb anfallenden Prozeßlösungen (nach der letzten Kolonne mit organischem Austauscherharz) ist das Verhältnis von Molybdän zu den anderen relevanten partiell anionisch vorliegenden Elementen wie Ru, Sn, und Zr durch die Abreicherung dieser Elemente in den chromatographischen Hauptreinigungsstufen der Vorreinigung wesentlich günstiger. Die nachfolgenden Experimente wurden überdies separat für jedes Element durchgeführt, so daß beim Vorliegen eines Spaltproduktgemisches die Mitsorption der gegenüber den hochgeladenen $\text{Mo}_7\text{O}_{24}^{6-}$ -Anionen nur niedrig geladenen Spaltproduktspecies weiter zurückgedrängt werden dürfte. Hierdurch wären aber noch weitaus höhere Dekontaminationsfaktoren als die in den Versuchen erreichten möglich.

Die Rückhaltung der Elemente Cer und Jod an den Metalloxiden lag im Rahmen der statistischen Fehlergrenzen der Aktivi-

- 7 -

tätsmessungen (Vergleich der Impulsraten der abpipettierten Lösungs-Aliquote vor und nach der Sorption), so daß ein eventuell sorbierter Anteil als vernachlässigbar angesehen werden muß. Hierdurch sind die Dekontaminationsfaktoren für
5 Ce und J bereits für den Sorptionsschritt sehr viel größer als 100. Aufgrund dieser Ergebnisse waren Desorptionsexperimente für diese beiden Elemente nicht mehr durchführbar.

10 Als Trägergas sind nicht nur mit H_2O beaufschlagter Stickstoff oder mit H_2O beaufschlagter Sauerstoff verwendbar, sondern auch andere H_2O enthaltende Gasgemische, wie z. B. Luft, Edelgase mit oder ohne O_2 etc.

Versuch 1:

15 Zur Molybdänrückhaltung an Al_2O_3 , SnO_2 und ZrO_2 wurde eine inaktive Molybdat-Lösung, welche salpetersauer war und eine Molybdänkonzentration von $1,77 \times 10^{-3}$ Mol/l aufwies, bei verschiedenen Aufgabeladungen (mg Mo/g Sorptionsmittel-Oxid bzw. Austauscher) untersucht. Die Ergebnisse sind in den
20 Figuren 2 und 3 aufgeführt. Figur 2 zeigt dabei die Mo-Rückhaltung aus 0,02 M HNO_3 -Lösungen, wobei die Kurve 21 für die Sorption an saurem Al_2O_3 steht, die Kurve 22 für die Sorption an SnO_2 und die Kurve 23 für die Sorption an ZrO_2 . Die Kurvenwerte der Figur 3 wurden aus 1 M HNO_3 -Lösungen
25 erhalten. Die Kurve 31 gibt die Mo-Rückhaltung an saurem Al_2O_3 , die Kurve 32 an SnO_2 und die Kurve 33 an ZrO_2 wieder. Aus diesen Ergebnissen läßt sich erkennen, daß eine Mo-Sorption aus schwachsauren Lösungen an Al_2O_3 bis zu einer Aufgabeladung von ca. 30 mg Mo/g Austauscher
30 erreicht wird. Bei der Verwendung von SnO_2 ist zwar eine Aufgabeladung von nur ca. 4 mg Mo/g Austauscher brauchbar, dies jedoch bis zu einer hohen Säurestärke der wäßrigen Lösung. Die Mo-Rückhaltung an ZrO_2 (Kurve 23) ist vergleichbar mit der an SnO_2 (ca. 4 mg Mo/g ZrO_2 Durchbruchskapazität).

- 8 -

Kurve 33 gibt die Mo-Rückhaltung aus 1 M HNO₃-Lösung wieder, wobei zu erkennen ist, daß die Sorption bei einer höheren Säurestärke der Aufgabelösung - wie auch schon bei den anderen Oxiden festgestellt wurde - verringert wird. Der Kapazitätsverlust des ZrO₂ ist etwas größer als beim SnO₂, jedoch weitaus geringfügiger als beim Al₂O₃-System. ZrO₂ ist bezüglich seines Sorptionsverhaltens somit weitgehend dem SnO₂ vergleichbar.

10 Versuch 2:

In Abhängigkeit vom pH-Wert der Speiselösung, welche eine Molybdän-Konzentration von $2,2 \times 10^{-3}$ Mol/l besaß, wurden bei einer Mo-Aufgabebeladung von 3 mg/g Austauscher während einer Kontaktzeit von 20 Stunden die Mo-Verteilungskoeffizienten an Al₂O₃ und SnO₂ untersucht. In Figur 4 sind die Einzelergebnisse für die Verteilungskoeffizienten K_D (ml/g) zu den Kurven 41 an Al₂O₃ und 42 an SnO₂ zusammengezogen. Die weitgehende pH-Wert-Unabhängigkeit der beiden Austauscher-Arten bzw. Sorptionsmittel bei den angegebenen Bedingungen tritt klar hervor.

Versuch 3 (direkte Molybdän-Sublimation aus dem beladenen Metalloxid-Austauscher bzw. -Sorptionsmittel):

Mit Molybdat-Anionen beaufschlagte Metalloxid-Austauscher-Partikel 1 wurden in eine Sublimationsvorrichtung nach Figur 1 in den Sublimationsraum 2, welcher zur Seite der Trägergaszuführung 4 durch eine gasdurchlässige Quarzfritte 6 abgeschlossen ist, eingeführt. Außerhalb des Raumes 2 ist um diesen herum eine Induktionsheizung 8 (Generator hierzu in Figur 1 nicht gezeigt) mit einem den Raum 2 umgebenden Graphitring 9 innerhalb der Induktionsheizeinrichtung 8 angeordnet. Hierdurch wird die gezielte Aufbringung auch hoher Temperaturen, wie 1200° bis 1300° C, ermöglicht. Der Sublimationsraum 2 ist gegenüber dem Raum 3, in welchem die Desublimation des Mo-Oxids stattfindet, durch eine Quarz-

- 9 -

fritte 7 abgeschlossen. Der Desublimationsraum 3 weist Quarzfüllkörper 10 auf, die die Desublimation erleichtern. Zur leichteren Auflösung des im Raum 3 desublimierten Mo-Oxids ist der Teil 11 der Vorrichtung, der den Desublimationsraum 3, die Quarzfritte 7 und das Gasableitungsrohr 5 enthält, vom Rest der Vorrichtung abnehmbar ausgebildet.

Anstelle der Quarzfritte 6 kann auch ein Einsatz aus beispielsweise einem Pt-Tiegel mit durchbohrtem oder perforiertem Boden, welcher das beladene Metalloxid aufnimmt, den Raum 2 gegenüber der Gas-Zuführung 4 während der Durchführung der Sublimation des Mo-99-Oxids abschließen. Die Heizung 8 der Vorrichtung ist nicht auf eine induktive Heizung beschränkt, sondern kann durch andere brauchbare, von außen auf den Raum 2 wirkende Heizeinrichtungen gebildet sein.

In der beschriebenen Vorrichtung wurde nun die Molybdänsublimation aus beladenen Metalloxid-Austauschern als Funktion der Sublimationszeit bei verschiedenen Temperaturen untersucht. Die Beladung der Metalloxid-Austauscher betrug jeweils 4,7 mg Mo/g Austauscher. Die Ergebnisse sind in den Figuren 5 und 6 dargelegt. Figur 5 zeigt die Molybdänsublimationsausbeuten F in Prozenten der ursprünglichen Beladung aus Al_2O_3 bei den Temperaturen

25

1250° C (Kurve 51)

1150° C (Kurve 52)

1075° C (Kurve 53)

960° C (Kurve 54)

30

mit einem Trägergas N_2/H_2O mit einem Durchfluß von 33,3 l/Stunde mit 32 g H_2O /Stunde. Es ist zu erkennen, daß innerhalb einer Sublimationszeit von ca. 90 Minuten nur bei 1250° C befriedigende Ergebnisse erzielt werden können. Figur 6 zeigt, daß die Molybdänsublimationsausbeute F aus beladenem SnO_2 -Austauscher hohe Werte über 90 % bereits bei einer

35

- 10 -

Sublimationszeit von ca. 30 Minuten zu erreichen sind. Die Ausbeuten, mit einem Trägergas N_2/H_2O (Gasdurchsatz und Wasseranteil wie zu Figur 5 beschrieben) ergeben die Kurve 62 und werden sogar noch übertroffen durch die Ausbeuten, welche mit einem Trägergasstrom aus Sauerstoff und Wasser des gleichen Durchsatzes und Wassergehaltes, wie für N_2/H_2O beschrieben, erhalten wurden (siehe Kurve 61).

Mit einem sauerstoffhaltigen Trägergas ohne H_2O -Anteil wurden aus beladenem SnO_2 Mo-Sublimationsausbeuten erhalten (siehe Kurve 63), die bei Sublimationszeiten bis 80 Minuten zwischen den Kurven 61 und 62 liegen, jedoch ab 80 Minuten 98 % erreichten.

Die Abhängigkeit der Molybdänsublimationsausbeuten aus Al_2O_3 - bzw. SnO_2 -Austauschern in Abhängigkeit von der Molybdänbeladung bei $1250^\circ C$ und einer Sublimationszeit von 40 Minuten unter Verwendung eines Trägergases aus N_2/H_2O mit $33,3 \text{ l/Stunde}$ und $32 \text{ g } H_2O/\text{Stunde}$ zeigt Figur 7. Während aus Al_2O_3 erst von einer Beladung von $4,7 \text{ mg Mo/g}$ Austauscher an eine über 90 %ige Ausbeute erhältlich ist (Kurve 71), ist aus SnO_2 eine Ausbeute in gleicher Höhe für den Beladungsbereich $0,5 \text{ mg Mo/g}$ Austauscher bis $4,7 \text{ mg Mo/g}$ Austauscher (Kurve 72) zu erzielen.

25

Die Dekontaminationsfaktoren der Spaltprodukte Ru, Sn, und Zr, bezogen auf Mo, im SnO_2 -System sind folgende:
Nach 30 Minuten Sublimationszeit bei $1250^\circ C$ für Ru: ca. 40, für Sn: größer als 100 und für Zr: größer als 100.

30

In der beschriebenen Sublimationsvorrichtung nach Figur 1 wurde das Molybdändesorptionsverhalten aus ZrO_2 , welches mit $4,7 \text{ mg Mo/g}$ beladen war, ermittelt. Die folgende Tabelle gibt einige prozentuale Verflüchtigungsausbeuten bei $1250^\circ C$ und N_2/H_2O - bzw. O_2/H_2O -Trägeratmosphäre wieder:

- 11 -

	30 min Sublimationszeit	60 min. Subl.-Zeit
N ₂ /H ₂ O-Atmosphäre	89,4 %	91,4 %
5 O ₂ /H ₂ O-Atmosphäre	87,7 %	90,65 %

Die aus diesen Einzelmessungen erhaltenen Ausbeutewerte sind mit den im Al₂O₃-System bei den gleichen Sublimations-
10 parametern ermittelten Werten vergleichbar. Bei einer kleineren Mo-Beladung von 0,5 mg Mo/g ZrO₂ ergab sich unter O₂/H₂O- Trägergas bei 1250^oC wie schon beim Al₂O₃ eine Verringerung der Sublimationsausbeute nach 30 Min.-Sublimationszeit auf lediglich 60,2 %.

Kernforschungszentrum
Karlsruhe GmbH

Karlsruhe, den 3. Februar 1987
PLA 8632 Gl/hr

Patentansprüche:

1. Verfahren zur Feinreinigung von Spaltmolybdän, gelöst in anionischer Form gemeinsam mit Anionen der Spaltprodukte des J, Sn, Ce, Ru und Zr in wäßriger mineralsauerer Lösung, bei welchem
 - a) in einem Sorptionsschritt das Spaltmolybdän an einem Metalloxid fixiert und
 - b) in einem Desorptionsschritt wieder freigesetzt wird, dadurch gekennzeichnet, daß
 - c) die wäßrige Lösung zur Sorption der Anionen des Mo, J, Ce, Ru, Sn, und Zr über ein amphoteres Oxid geleitet wird,
 - d) das beladene Oxid getrocknet wird und danach zur Sublimation des Mo auf eine Temperatur im Bereich von 1200° C bis 1300° C erhitzt und gleichzeitig mit einem Wasserdampf enthaltenden Trägergasstrom beaufschlagt wird,
 - e) durch Abkühlung auf eine Temperatur unterhalb 600° C das Mo aus dem Trägergasstrom desublimiert wird und der hierdurch entstehende Mo-Rückstand nach weiterer Abkühlung auf Raumtemperatur in einer wäßrigen Lösung einer starken Alkalie aufgelöst und in eine Molybdatlösung überführt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als amphoteres Oxid SnO_2 verwendet wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als amphoteres Oxid $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ verwendet wird.

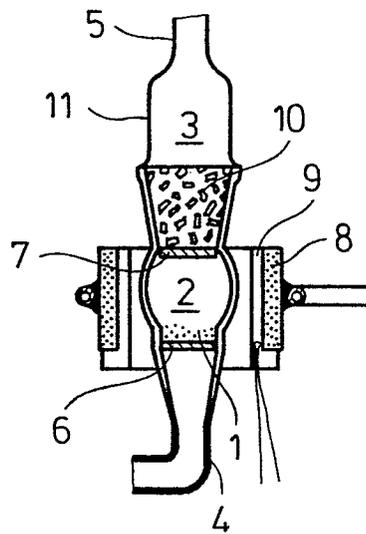
- 2 -

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als amphoterer Oxid ZrO_2 verwendet wird.
5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Trägergasstrom außer Wasserdampf Sauerstoff enthält.
6. Verfahren zur Feinreinigung von Spaltnmolybdän, gelöst in anionischer Form gemeinsam mit Anionen der Spaltprodukte des J, Sn, Ce, Ru und Zr in wäßriger mineralisauerer Lösung, bei welchem
 - 10 a) in einem Sorptionsschritt das Spaltnmolybdän an einem Metalloxid fixiert und
 - b) in einem Desorptionsschritt wieder freigesetzt wird, dadurch gekennzeichnet, daß
 - 15 c) die wäßrige Lösung zur Sorption der Anionen des Mo, J, Ce, Ru, Sn und Zr über SnO_2 geleitet wird,
 - d) das beladene SnO_2 getrocknet wird und danach zur Sublimation des Mo auf eine Temperatur im Bereich von $1200^\circ C$ bis $1300^\circ C$ erhitzt und gleichzeitig mit einem Sauerstoff enthaltenden Trägergasstrom beaufschlagt wird,
 - 20 e) durch Abkühlung auf eine Temperatur unterhalb $600^\circ C$ das Mo aus dem Trägergasstrom desublimiert wird und der hierdurch entstehende Mo-Rückstand nach weiterer
 - 25 Abkühlung auf Raumtemperatur in einer wäßrigen Lösung einer starken Alkalie aufgelöst und in eine Molybdatlösung überführt wird.
7. Vorrichtung zur Durchführung des Desorptionsschrittes des Verfahrens nach Anspruch 1 oder 6, gekennzeichnet durch
 - 30 einen das beladene amphotere Metalloxid (1) aufnehmenden beheizbaren ersten Raum (2) und einen zweiten, das Sublimat aufnehmenden Raum (3) zwischen einer Gaszuführung (4) und einer Gasableitung (5), durch zwei von einander
 - 35 trennt angeordnete, gasdurchlässige Membranen bzw. Frit-

- 3 -

- ten (6, 7), von denen die eine Fritte (6) den ersten Raum (2) gegenüber der Gaszuführung (4) abschließend und die andere Fritte (7) den ersten Raum (2) von dem in Strömungsrichtung der Gasführung angeordneten zweiten Raum (3) trennend ausgebildet ist und durch eine Heizung (8).
- 5
8. Vorrichtung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Heizung (8) als induktive Heizeinrichtung mit einer dem ersten Raum (2) zugewandten Graphitschicht (9) ausgebildet ist.
- 10
9. Vorrichtung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der zweite Raum (3) mit Quarzfüllkörpern (10) versehen ist.
- 15
10. Vorrichtung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Teil (11) der Vorrichtung, der den zweiten Raum (3), die Fritte (7) und die Gasableitung (5) umfaßt, vom Rest der Vorrichtung abnehmbar ausgebildet ist.

Fig. 1



2/4

Fig. 3

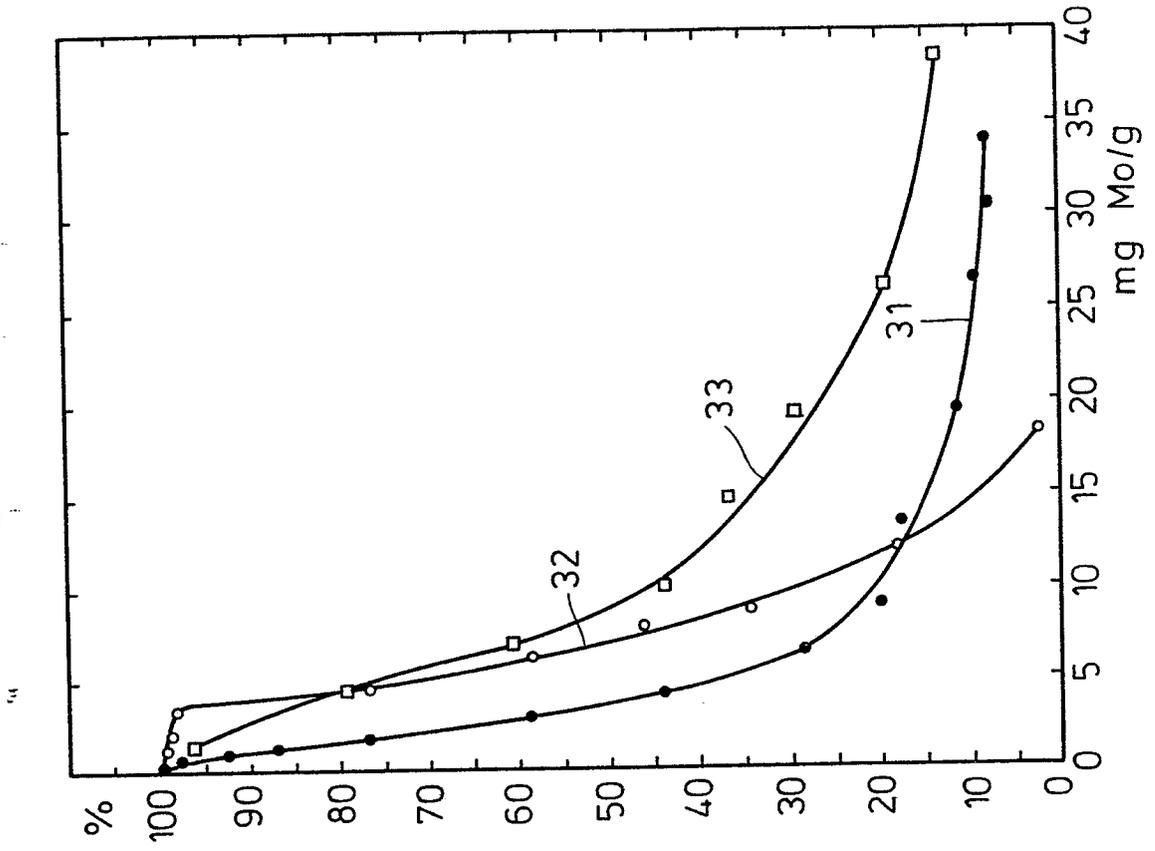
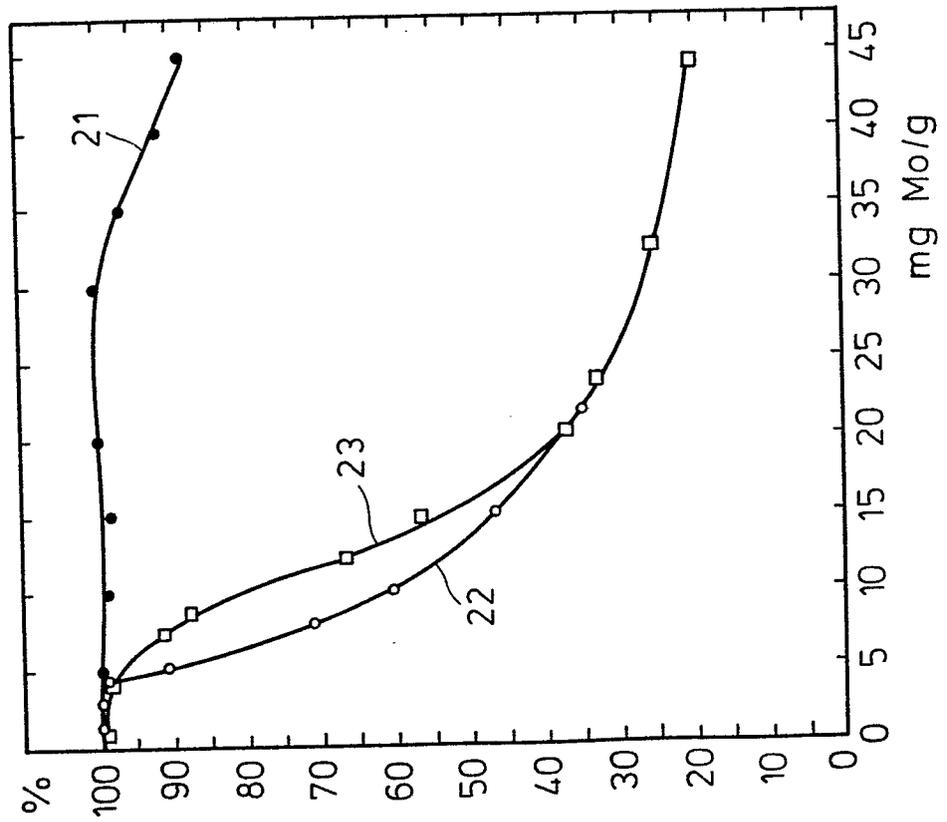


Fig. 2



3/4

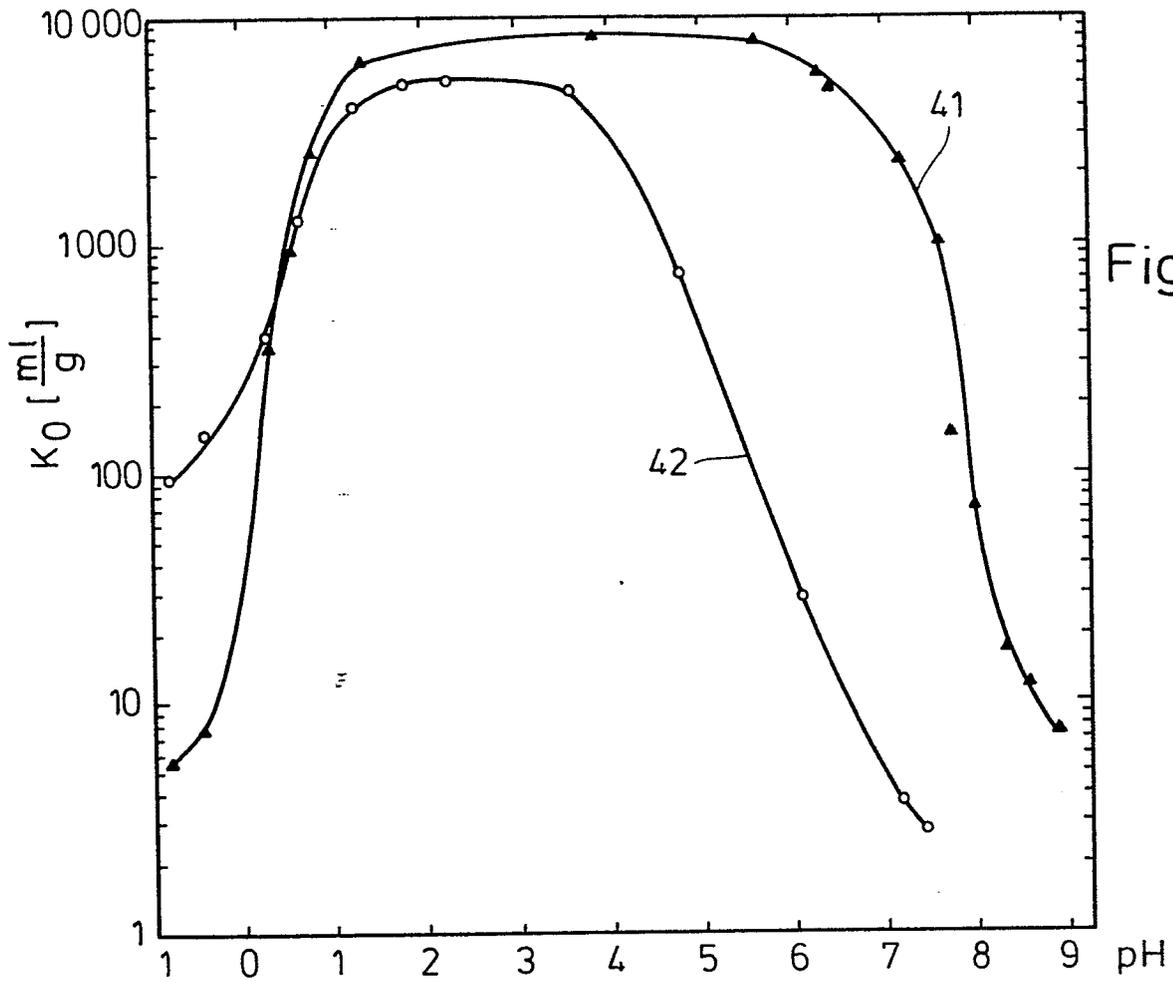


Fig. 4

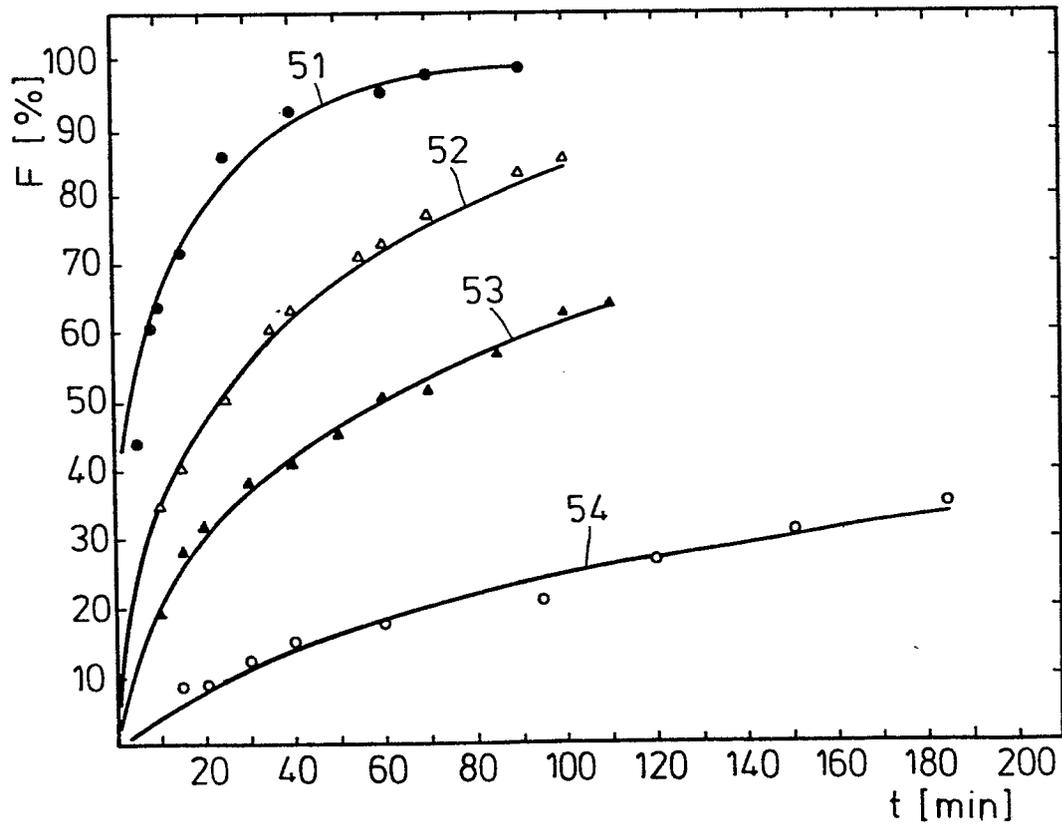


Fig. 5

4/4

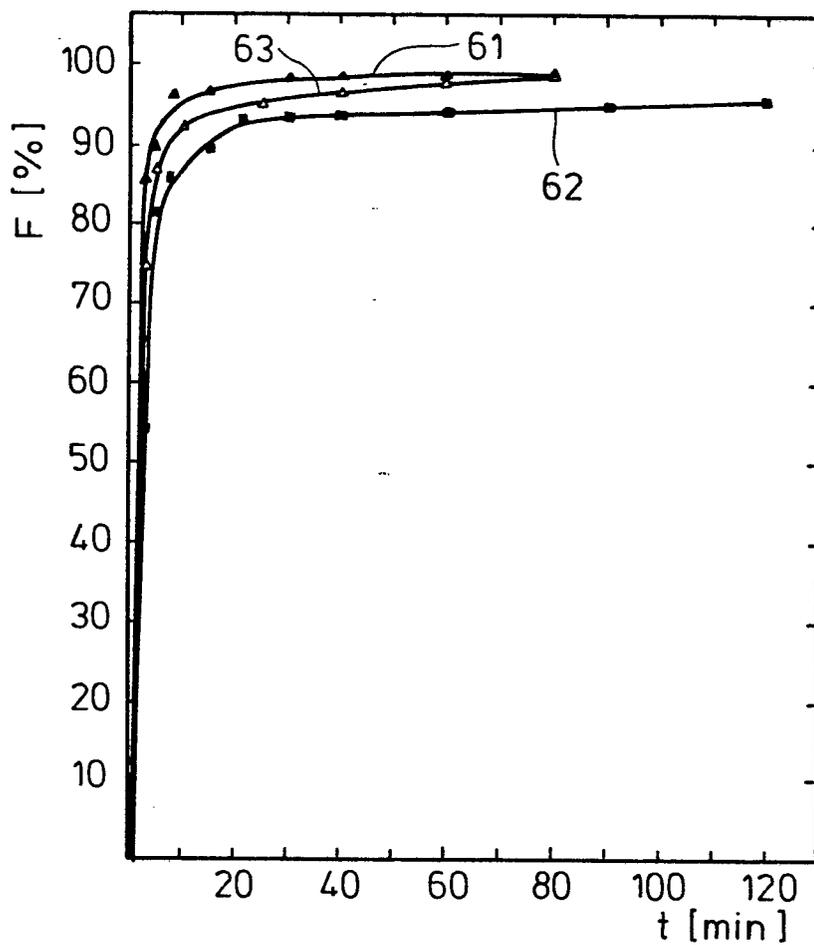


Fig. 6

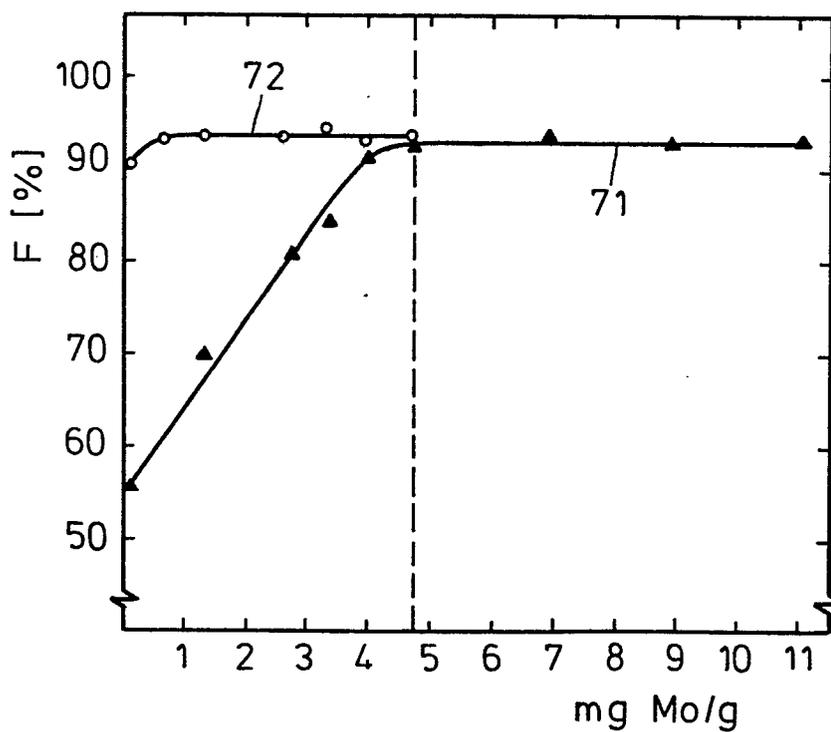


Fig. 7