



объединенный
институт
ядерных
исследований
дубна

14/4-79

B-23

12 - 12189

1849/2-79

Л. Вашарош, Ю. В. Норсеев, Г. Ю. Майер,
К. Береи, В. А. Халкин

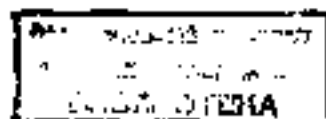
РЕАКЦИИ ЗАМЕЩЕНИЯ В БЕНЗОЛЕ
И ЕГО ГАЛОГЕНПРОИЗВОДНЫХ
АТОМАМИ АСТАТА, ОБРАЗУЮЩИМИСЯ
В ЯДЕРНОМ ПРЕВРАЩЕНИИ ^{211}Rn (Э.З.) ^{211}At

1979

Л.Вашарош, Ю.В.Норсеев, Г.-Ю.Майер,¹
К.Берек,² В.А.Халкин

РЕАКЦИИ ЗАМЕЩЕНИЯ В БЕНЗОЛЕ
И ЕГО ГАЛОГЕНПРОИЗВОДНЫХ
АТОМАМИ АСТАТА, ОБРАЗУЮЩИМИСЯ
В ЯДЕРНОМ ПРЕВРАЩЕНИИ $^{211}\text{Rn} (\beta, \beta^-) ^{211}\text{At}$

Направлено в "Radiochimica Acta"



¹ Центр ядерных исследований, Юлих, ФРГ.

² Центральный институт физических исследований,
Будапешт, ВНР.

Вашаров Л. и др.

12 12189

Реакция замещения в бензоле и его галогенпроизводных атомами астата, образующимся в ядерном превращении $^{211}\text{Bi}(\alpha, \beta) ^{211}\text{At}$

Исследованы реакции замещения галогенов и водорода в газообразных, жидких и твердых галогенбензолах в бензоле атомами астата, образующимся в ядерном превращении $^{211}\text{Bi}(\alpha, \beta) ^{211}\text{At}$. В ряду фторбензол, хлорбензол, иодбензол выкол провукот замещения галогена растёт, а фактот продуктоз замещения водорода - падает. Обнаружена линейная зависимость выхода продукта замещения галогена от его энергии связи. Распределение астата среди изомеров продуктоз замещения водородов близко к статистическому и не зависит от агрегатного состояния. Подобные результаты были получены и в ацилах. На основании полученных данных делается заключение, что реакция замещения атомами астата, образующимся при электронном захвате из ряда, в изученных системах - горячие ковалентные процессы, подобные взаимодействию галогенов, получавшимся в ядерных реакциях (α, γ) и (α, β) .

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Preprint Общественного института ядерных исследований, Дубна 1979

Vasharov L. et al.

12 12189

Replacement Reactions of EC-Produced ^{211}At in Benzene and Halobenzenes

Halogen and hydrogen replacement reactions in gaseous, liquid and solid benzene and halobenzenes by astatine atoms produced via the $^{211}\text{Bi}(\text{E.C.})^{211}\text{At}$ nuclear process were investigated. The halogen replacement increases in the order: $\text{C}_6\text{H}_5\text{F}$, $\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl}$, $\text{C}_6\text{H}_5\text{Br}$, $\text{C}_6\text{H}_5\text{I}$ while the hydrogen replacement decreases in the same order. The halogen substitution yields were found to be linearly dependent on the bond strength of the halogen. The isomer distribution of halogen replacement products is nearly statistical in all the halobenzenes, independent of the phase. In addition the hydrogen substitution yields were found to be in the same range. The results lead to the conclusion that the replacement reactions of EC-produced ^{211}At in the systems studied are hot homolytic processes, similar to those of hot halogenes formed via (α, γ) and (α, β) nuclear reactions.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research, Dubna 1979

ВВЕДЕНИЕ

В первых работах по изучению химических свойств астата, наиболее тяжелого члена семейства галогенов, было показано, что астату присущи металлические свойства^{1,2/}. Поэтому первоначально были синтезированы и изучены органические соединения многовалентного астата^{3/}. Позже были успешно проведены химические реакции одновалентного астата с образованием ковалентной связи C-At в алифатических^{4-7/} и ароматических^{8-10/} соединениях. Разработка надежных методов получения и хроматографической идентификации органических соединений астата^{7,12/} дала возможность приступить к детальному исследованию химических реакций горячих атомов астата, образующихся в ядерных превращениях.

Первые эксперименты в этом направлении были посвящены изучению химических последствий ядерных превращений $^{211}\text{Bi}(\alpha, \beta) ^{211}\text{At}$ в бензоле^{13/} и некоторых алифатических соединениях^{14/}, а также синтезу астагобензола с использованием атомов отдачи астата в ядерной реакции $^{209}\text{Bi}(\alpha, \beta) ^{211}\text{At}$ в трифенилвисмуте^{15/}.

Наличие в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ синхротрона, хорошо разработанных методов выделения и очистки изотопов благородных газов, а также методов анализа получаемых соединений позволило нам начать систематические исследования реакций горячих атомов астата с ароматическими соединениями^{16,17/}.

Изучение реакций замещения водорода и галогенов в бензоле и его галогенных производных горячими атомами астата дает дополнительные сведения о механизме взаимодействия горячих атомов галогенов^{18-22/}. В то же время химические реакции энергетических атомов, об-

разрушающихся в ядерных превращениях в результате электронного захвата и β^+ -распада ²¹¹At представляют самостоятельный интерес вследствие малой кинетической энергии энергетических атомов по сравнению с горячими, получаемыми в ядерных реакциях (n, γ) и (n, β n). Изучаемые нами реакции дают дополнительные сведения об энергетическом и зарядном состоянии реагирующих частиц, а также о реакционной способности астата по отношению к органическим соединениям.

Кинетическую энергию атомов астата-211, образующихся при электронном захвате, можно оценить, исходя из значения Q-ядерного процесса и энергетического баланса гамма-переходов ²¹¹At дочернего элемента. Эта энергия может составлять несколько электронвольт. Из-за высокого порядкового номера астата образование первичных вакансий в К-оболочке сопровождается в основном флюоресценцией, выход которой более 95% ²⁹. Поэтому ионизация астата-211, вызываемой оже-эффектом, можно пренебречь. Однако захват орбитального электрона приводит к возбуждению ядер астата до энергий ~100 эВ ³⁰, вызывая "встряску" атома ³¹, в результате чего образуется многозарядный ион. Так как потенциал ионизации наиболее тяжелого галогена относительно низкий, не исключена возможность реакции положительно заряженного иона астата с ароматическими молекулами. Поэтому в данной работе обращено особое внимание на изомерное распределение продуктов замещения водорода. Термические ионы астата ³², как и ионы других галогенов, в жидких ³³ и газообразных ³⁴ ароматических системах обладают внутримолекулярной селективностью в реакциях замещения водорода. В то же время было обнаружено, что горячие атомы галогенов, образующиеся в ядерных реакциях (n, γ) и (n, β n), в однозамещенных ароматических соединениях приводят к образованию орто-, мета- и пара-изомерных продуктов с распределением, близким к статистическому ³⁵⁻³⁷.

Наряду с галогенными производными бензола, обладающими (-I)-эффектом, мы использовали в качестве субстрата в анализе с (-I)-эффектом.

Есть основание предположить, что органические соединения астата-211 в конденсированных системах могут образоваться в результате радикальных рекомбинационных

реакций. Поэтому для изучения роли рекомбинационных реакций в клетках, в частности замещения водорода в галогенах, были проведены эксперименты с бензолом, фтор-, хлор- и бромбензолом как в конденсированной, так в газовой фазе, где эффектом клетки можно пренебречь.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Изотопы радона были получены путем облучения металлического тория протонами с энергией 660 МэВ на синхротронном циклотроне ДЯИ ОИЯИ. Благородные газы выделялись из смеси методом, описанным в работе ³⁸. Изотопы радона отделали от изотопов криптона и ксенона газохроматографически на молекулярных ситах ³⁴. Окончательную очистку от следов воды, воздуха и астата, а также расфасовку радона проводили на вакуумной установке ¹⁶. Время до конца очистки радона, включая охлаждение мишеней ~8 час/ и переработку, составляло 15 ч. К этому времени изотопная чистота радона-211 достигала 99%, так как период полураспада ²¹¹Rn / $T_{1/2}$ = 14,6 ч больше, чем у других нейтрондефицитных изотопов радона. Радиохимическую чистоту препаратов радона-211 проверяли на гамма-спектрометре.

Радон-211 в количестве ~200 мкКи переводили в стеклянную ампулу, содержащую ~100 мкг субстрата C₆H₅X (где X - H, F, Cl, Br, I, NH₂) с иодом (0,5 Моль %) или без иода. Ампулы запаивали и выдерживали в темноте при комнатной температуре или температуре жидкого азота. Незаполненная часть объема ампулы составляла меньше 10%. В случае экспериментов с газообразными субстратами в колбу объемом 2 л переводили ~1 мКи радона-211 в ароматическое соединение в таком количестве, которое при выбранной температуре создавало давление в колбе около 50 Тор. Газообразные пробы выдерживали в темноте при температуре 90°С. Используемые количества радона позволяли надежно определять небольшие выходы продуктов замещения, как это показано на рис. 1.

Изменение времени выдерживания ампул от 10 до 40 ч не влияло на выход продуктов. Обычно ампулы

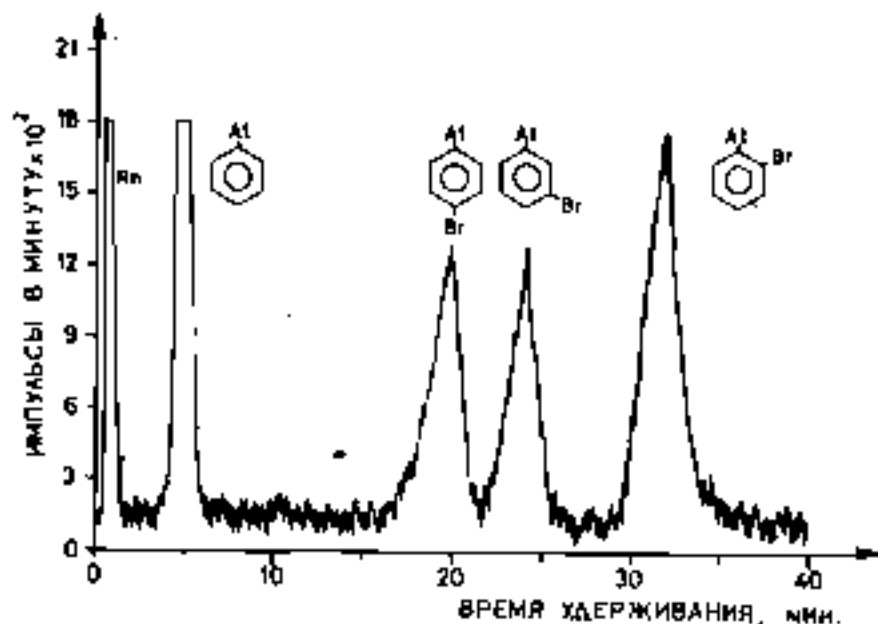


Рис. 1. Хромограмма продуктов замещения астатом-211 в газообразном бромбензоле.

вскрывали через 20 ч по достижении максимальной активности астата-211.

Для определения общего органического выхода субстрат после разбавления его четыреххлористым углеродом обрабатывали водным раствором NaOH , содержащим небольшое количество восстановителя - Na_2SO_3 . В смесь вводили несколько кристалликов металлического теллура с целью удаления полония-207²¹¹, образующегося при альфа-распаде радона-211. Анализ гамма- и рентгеновских спектров показал отсутствие полония как в органической, так и в водной фазах. Небольшое количество радона (~10% от общей активности) оставалось в органической фазе. Его точное количество определяли газохроматографическим методом и учитывали при расчете радиохимических выходов продуктов астата-211.

Продукты замещения астатом-211 в бензоле и галогенбензолах разделяли газохроматографически на стеклянных колонках, заполненных Хромосорбон W-AW-DMCS,

содержащем 20% SF_6 и 6% Бентон-34^{19,36}. Радиоактивные продукты, выходящие из колонки, детектировались сцинтилляционным счетчиком, регистрировались самописцем и на выходе после детектора адсорбировались на активированном угле для последующего измерения активности сцинтилляционным счетчиком с коллодием. Времена удерживания анализируемых продуктов "горячего" замещения были определены и предварительно опробованы путем сравнения с временами удерживания аналогичных галогенпроизводных, а также определены времен удерживания соответствующих ожидаемых астаторганических соединений, синтезированных предварительно. Методы синтеза и газохроматографической идентификации ароматических соединений астата подробно описаны в работах^{18,19,32}. Астатированные производные бензола устойчивы в условиях газохроматографического разделения /максимальная температура колонки 140°С, газ-носитель - гелий/, что было подтверждено результатами повторного ввода вышедших из колонки продуктов.

Изомеры астатанилины были разделены методом жидкостной хроматографии под высоким давлением на колонках из нержавеющей стали, заполненных Меркосорбон S_1-60 . Элюентом служила смесь: H_2 -гелтан, ди-*n*-бутиловый эфир, пропановая и уксусная кислоты в объемном соотношении 5:0:200:30:8^{17,37}.

Данные, приведенные в таблицах, представляют собой среднестатистические величины со среднеквадратичным отклонением, полученные не менее чем в 3-х экспериментах с одним и тем же субстратом при 2-3 газохроматографических анализах последнего.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Общий органический выход, выход продуктов замещения галогена и водорода астатом в газообразном, жидком и твердом бензоле и галогенбензолах с аксиптором и без него представлены в таблицах 1-3. В табл. 3 показано также равномерное распределение продуктов замещения водорода. Выход продуктов замещения горячими атомами астата в жидком и твердом аналитике, а также равномерное распределение астатанилинов приведены в табл. 4.

Общий органический выход. Из данных табл. 1 видно, что в жидком бензоле без акцептора - 80% образовавшегося астата стабилизируется в органической форме.

Таблица 1

Общий органический выход в бензоле и галогенбензолах

Система	Выход (% от образовавшегося астата-2II)					
	Газообразное состояние		Жидкое состояние		Твердое состояние	
	-	+ I ₂	-	+ I ₂	-	+ I ₂
C ₆ H ₆	46,0±5,0	9,1±2,3	79,6±5,7	25,0±1,0	69,1±0,9	10,0±1,3
C ₆ H ₅ F	53,5±1,2	6,6±2,2	73,0±7,0	35,1±4,8	59,9±2,5	34,8±3,5
C ₆ H ₅ Cl	48,9±0,4	2,9±0,2	81,8±1,7	45,1±0,9	67,5±4,5	29,4±0,8
C ₆ H ₅ Br	-	4,2±1,3	78,0±7,0	58,9±3,3	52,0±1,7	42,9±1,6
C ₆ H ₅ I	-	-	80,0±2,0	70,0±4,0	58,0±1,0	44,5±2,5

Присутствие вода в бензоле и фторбензоле снижает общий органический выход до ~ 30%. В то же время в ряду фтор-, хлор-, бром- и иодбензол в присутствии вода эта величина возрастает до 70%, как это указано на рис. 2. Зависимость выхода органических продуктов астата от концентрации вода в жидком хлорбензоле /рис. 3/ отражает типичное влияние акцептора. Существенный эффект присутствия вода в бензоле и фторбензоле указывает на наличие термических радикальных реакций, приводящих к образованию большого количества органических продуктов астата.

Уменьшение эффекта акцептора в ряду фторбензол-иодбензол, по всей вероятности, отражает последовательность увеличения чувствительности галогенбензолов к радикальной атаке^{/38/}. Это означает, что вероятность реакции термолитованных атомов /радикалов/ астата с субстратом возрастает, особенно если эти процессы протекают в жидкой клетке.

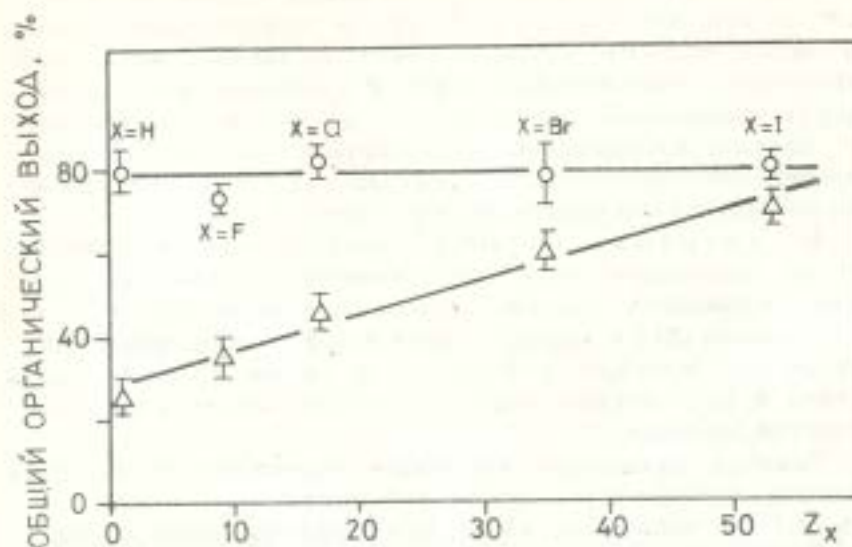


Рис. 2. Общий органический выход астата-2II в жидких C₆H₅X системах без добавки вода - /O/ и в присутствии 0,5 моль % I₂ - (Δ).

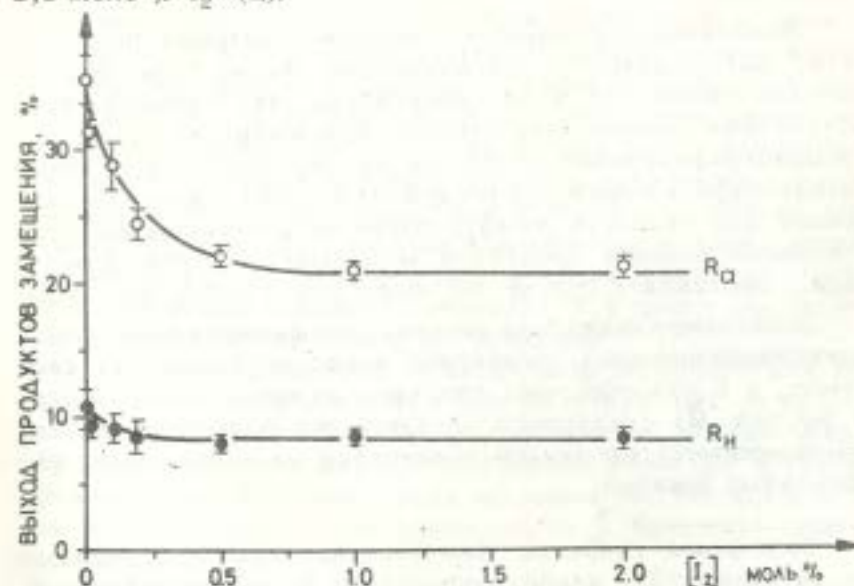


Рис. 3. Зависимость выхода органических продуктов астата-2II от концентрации вода в жидком хлорбензоле.

Таблица 2

Продукты замещения галогена астатом-211
в галогенбензолах

Система	Выход (% от образующегося аста-211)					
	Газообразное		Жидкое		Твердое	
	-	$^{18}O_2$	-	$^{18}O_2$	-	$^{18}O_2$
C_6H_5F	3,1 \pm 0,2	0,35 \pm 0,03	4,9 \pm 0,9	1,0 \pm 0,4	2,7 \pm 0,2	2,3 \pm 0,6
C_6H_5Cl	3,7 \pm 0,2	1,9 \pm 0,3	35,3 \pm 5,2	10,8 \pm 0,3	0,9 \pm 1,8	7,0 \pm 1,6
C_6H_5Br	-	2,4 \pm 0,8	41,0 \pm 5,0	27,6 \pm 3,3	16,0 \pm 0,9	12,0 \pm 1,0
C_6H_5I	-	-	64,0 \pm 2,0	32,8 \pm 1,8	17,0 \pm 1,3	13,0 \pm 0,6

Сильное влияние акцептора на общий органический выход аста-211 для газовой фазы подтверждает ранее высказанное нами предположение о значительной роли термических радикальных реакций в образовании органических соединений аста-211. Так как в газовой фазе нет клетки, то образование органических продуктов через термические радикальные реакции во всех субстратах можно эффективно подавить акцептором.

В твердых системах общий органический выход аста-211 несколько ниже по сравнению с жидкими. Это можно объяснить, вероятно, неравномерным распределением радио-211 в замороженной пробе, замедленной подвижностью молекул субстрата, а также стабилизирующей аста-211 в виде неспособных к реакциям частиц в кристаллической матрице.

Влияние акцептора на общий органический выход в твердых субстратах подобно его влиянию в жидких системах. Это указывает на то, что радикалы, образующиеся в замороженном субстрате, сохраняют свою реакционную способность и реагируют с атомами аста-211 в момент разморозки.

"Неидентифицированные продукты". Большая часть аста-211, находящаяся в органической форме, состоит из высококипящих, по всей вероятности полиядерных, ароматических соединений, которые при выбранных условиях хроматографирования остаются на колонке. Они называются "неидентифицированными продуктами". Их количество, найденное как разность между общим органическим выходом и суммой выходов продуктов замещения галогена и водорода, составляет ~50% во всех субстратах без воды.

Добавление акцептора значительно снижает выход "неидентифицированных продуктов" в конденсированных системах, а в газообразных системах их выход уменьшается в 50 раз. Из сказанного следует, что большинство этих высококипящих продуктов образуется из термических радикальных реакций.

Замещение галогена. Как показано в табл. 2, большая часть аста-211 стабилизируется в форме астабензола, особенно в конденсированных средах. Добавление воды

мало влияет на выход этого продукта по сравнению с общим органическим выходом и особенно выходом высококипящих продуктов. Выход продукта замещения галогена в замороженных галогенбензолах ниже по сравнению с жидкими субстратами. Это можно объяснить теми же фактами, что и в случае общего органического выхода.

Выход продуктов замещения галогена в галогенпроизводных бензолах возрастает в ряду фтор, хлор, бром и вод, как это показано на рис. 4 для жидких сред с акцептором. Кроме того, была найдена линейная зависимость выхода продукта замещения галогеном аста-211 от энергии связи галогена /рис. 5/. Такая же зависимость выхода продукта замещения галогеном от его энергии связи существует в аналогичных процессах распада ^{210}Po , а также для галогенов, образующихся в ядерных реакциях ^{211}Po .

Подобное поведение аста-211 было отмечено для всех субстратов, в том числе и для газообразных, в которых отсутствует рекомбинационная реакция в клетке. Аналогичный ход зависимости замещения галогена в газообразных и жидких субстратах указывает на то, что в механизме реакции в этих системах не отличаются существенным образом.

Некоторые другие факторы, такие как возрастающая поляризуемость заместителей в этом ряду, пространствен-

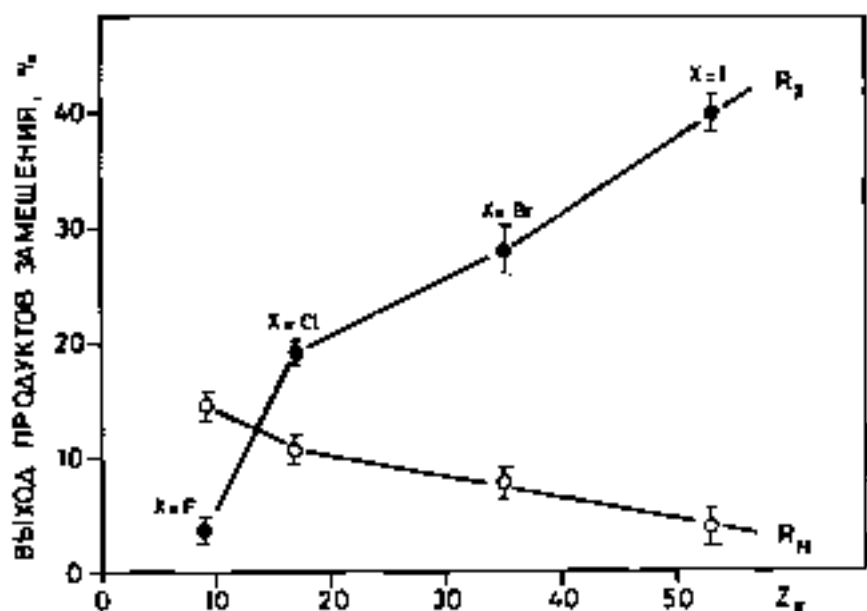


Рис. 4. Выход продуктов замещения галогена и водорода астабом-211 в жидких C_6H_5X системах, содержащих 0,5 моля % I_2 .

ные эффекты, также могут оказывать подобное влияние на выход.

Замещение водорода. Как можно видеть из данных табл. 3, выход продуктов замещения водорода уменьшается от фторбензола к иодбензолу, противоположно замещению галогена /рис. 4/. Это можно объяснить конкуренцией реакцией замещения астабом галогенов и водорода в галогенных производных бензола. Такая конкуренция, как мы предполагаем, может исходить из образования своего рода активированного комплекса, получающегося при атаке драматических молекул энергетическими атомами астаба, как это было предложено в работах^[21,40] для реакций замещения нейтральными горячими атомами галогенов в аналогичных системах:

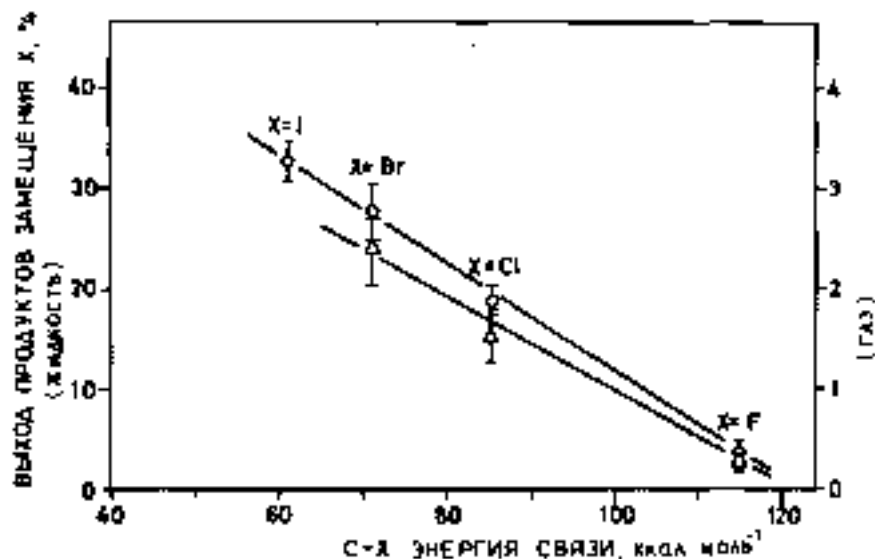
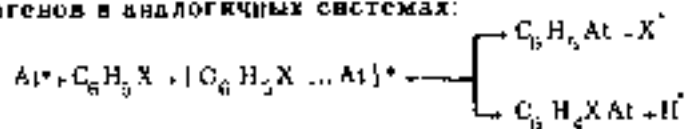






















Рис. 5. Зависимость выхода продукта замещения галогена астабом-211 от энергии связи C-X в газообразных (Δ) и жидких (\circ) C_6H_5X системах, содержащих 0,5 моля % I_2 .

Выход продуктов замещения водорода атомами астаба в конденсированных системах слабо зависит от добавки воды. В газообразных субстратах акцептор заметно снижает выходы продуктов замещения. Из этих результатов напрашивается вывод о значительной роли термических реакций рекомбинации в клетке, приводящих к образованию продуктов замещения в конденсированных средах. Однако это предположение не находит достаточного подтверждения в равномерном распределении продуктов замещения водорода. Из данных табл. 3 видно, что соотношение орто-: мета-: пара-астигалогенбензолов очень близко к статистическому 2:2:1 и не зависит от характера заместителя и добавки воды во всех изученных системах. Подобное статистическое распределение характерно для горячих гомолитических процессов замещения водорода атомами галогенов^[19-22] и значительно отличается не только от электрофильных^[37] но и от гомолитических процессов замещения водорода термическими атомами галогенов^[41-43].

Таблица 3

Продукты замещения водорода астатом-211 в бензоле и галогенбензолах

Система	Жидкое состояние		Твердое состояние	
	$+I_1$	$+I_2$	$+I_1$	$+I_2$
C_6H_6	2,6±1,5 	1,5±0,9 	22,8±2,5 	12,3±0,8 
C_6H_5F	3,4±1,3 	3,9±0,17 	14,4±4,0 	8,6±0,4 
C_6H_5Cl	1,1±0,2 	0,31±0,12 	10,7±1,7 	3,7±1,7 
C_6H_5Br	0,20±0,9 	0,8±0,9 	7,8±0,9 	3,7±0,5 
C_6H_5I	3,7±0,2 	4,9±0,5 	3,0±0,2 	3,0±0,2 

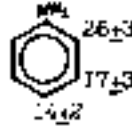
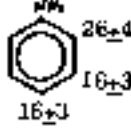
Выход (в % от стехиометрического астата-211) в стехиометрическом соотношении γ (орто-мета-пара $\times 100$)

Увеличение выхода продуктов замещения водорода астатом в жидком и твердом состоянии в присутствии воды, вероятно, связано с тем, что в этих системах может повышаться роль реакции электрофильного замещения.

Замещение водорода в аммиаке. Данные табл. 4 показывают, что выход и взвешенное распределение астаганинов, образующихся в реакциях горячих атомов астата

Таблица 4

Общий органический выход и продукты замещения водорода астатом-211 в аммиаке

	Жидкое состояние	Твердое состояние
Общий органический выход	30±4	50±5
Выход при замене водорода	5,2±1,2	4,9±0,8
Относительное распределение астата среди изотопов (орто-мета-пара = 100%)	 26±3 17±3 14±2	 26±4 16±3 16±1

в жидком и твердом аммиаке, незначительно отличаются от подобных результатов, получаемых для галогенбензолов с акцептором. Поскольку астат-211, образующийся в процессе электронного захвата, не проявляет селективности в реакции замещения водорода в аммиаке, в котором орто- и особенно пара-положение сильно активированы по отношению к электрофильным атакам, это свидетельствует о том, что реакция замещения водорода в ароматических соединениях энергетическими атомами астата-211 является гомолитическим процессом.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исходя из экспериментальных результатов по изучению реакции энергетических атомов астата-211 с аромати-

тическими соединениями можно сделать следующие выводы:

1. Образующийся в результате электронного захвата астат-211 реагирует с галогенбензолами, давая соединения, в которых он находится в одновалентном состоянии.

2. Несмотря на то, что в процессе "выгрузки" после электронного захвата образуются многозарядные положительные ионы астата, последние нейтрализуются окружающим субстратом даже в газовой фазе, и в конечной реакции участвуют нейтральные атомы астата.

3. Подобие в выходах продуктов замещения и распределение изотопов в жидких и газообразных системах указывает на то, что термические радикальные рекомбинационные реакции в жидкой клетке не играют существенной роли в образовании продуктов.

4. Процессы замещения в ароматических системах астатом, образующимся при электронном захвате из радона в обладающим кинетической энергией в несколько электронвольт и энергией возбуждения - 100 эВ, имеют в основном тот же характер, что и в случае взаимодействия других галогенов с кинетической энергией в сотни или тысячи электронвольт, образующихся в ядерных реакциях. Это поведение астата указывает на то, что процесс замещения не требует очень высокой кинетической энергии реагирующей частицы. Реакции также могут проходить с возбужденными атомами астата.

Авторы выражают благодарность проф. Г.Штеклину, докторам Р.Шеллеру, К.Росслеру и Г.-Ю.Махуллу за обсуждение работы на отдельных ее этапах. Один из авторов /Г.-Ю.Мавер/ выносит благодарность организации ЦЕРН /Женева/ за обеспечение стипендией.

ЛИТЕРАТУРА

1. Corson D.R., MacKenzie E.R., Segre E. *Phys. Rev.*, 1940, 57, p.458, 1087; 1940, 58, p.672.

2. Johnson G.L., Leininger R.F., Segre E. *J.Chem.Phys.*, 1949, 17, p.1.
3. Нефедов В.Д. и др. ДАН СССР, 1962, 144, с.806.
4. Samson G., Aten A.H.W. Jr. *Radiochim. Acta*, 1968, 9, p.53.
5. Samson G., Aten A.H.W. Jr. *Radiochim. Acta*, 1969, 12, p.55.
6. Кузин В.И. и др. "Радиохимия", 1970, 12, с.414.
7. Gesheva M., Kolachkovsky A., Norseyev Yu. V. *J.Chromatogr.*, 1971, 60, p.414.
8. Vasaros L. et al. *Magy. Kem. Foly.*, 1974, 80, p.487.
9. Meyer G.-J., Rossler K., Stocklin G. *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 1975, 21, p.247.
10. Колачковски А., Халкин В.А. ОИЯИ, 12-9473, Дубни, 1976.
11. a) Rossler K., Tornau W., Stocklin G. *J.Radioanal. Chem.*, 1974, 21, p.199. b) Meyer G.-L. *Ber. Kernforschungsanlage Julich, Jul-1076, Julich*, 1974.
12. Vasaros L. et al. *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 1976, 27, p.329.
13. Нефедов В.Д. и др. *Радиохимия*, 1970, 12, с.194.
14. Кузин В.И. и др. *Химия высоких энергий*, 1972, 6, с.181.
15. Samson G., Aten A.H.W., Jr. *Radiochim. Acta*, 1970, 13, p.220.
16. Berei K. et al. *Radiochim. Radioanal. Lett.*, 1976, 26, p.177.
17. Meyer G.-J. *Ber. Kernforschungsanlage Julich, Jul-1418, Julich*, 1977.
18. Stocklin G., Tornau W. *Radiochim. Acta*, 1966, 6, p.86.
19. Stocklin G., Tornau W. *Radiochim. Acta*, 1968, 9, p.95.
20. Berei K., Stocklin G. *Radiochim. Acta*, 1971, 15, p.39.
21. Berei K., Vasaros L. *Radiochim. Acta*, 1974, 21, p.75.
22. Coenen H.H., Machulla H.-J., Stocklin G. *J.Amer. Chem. Soc.*, 1977, 99, p.2892.
23. Garhi
24. El Garhi M., Stocklin G. *Radiochim. Radioanal. Lett.*, 1974, 18, p.359.
25. Knust E.J., Hatfern A., Stocklin G. *J.Amer. Chem. Soc.*, 1974, 96, p.3733.
26. Ghani A.H.A., Ernois J.V., Muxart R. *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 1974, 18, p.281.
27. Зайцев В.М., Алексеев. *Радиохимия*, 1975, 17, с.132.
28. Shanshal A. *Ber. Kernforschungsanlage Julich, Jul-1402-NC, Julich*, 1977.
29. Asfner G. *Phys. Scripta*, 1972, 5, p.31.
30. Broyles C.D., Thomas D.A., Haynes S.K. *Phys. Rev.*, 1953, 89, p.715.
31. Serber R., Snyder H.S. *Phys. Rev.*, 1952, 87, p.152.

31. Carlson T.A. *Radiat. Res.*, 1975, 64, p.53.
32. а) Olah G.A. et al. *J.Amer. Chem. Soc.*, 1964, 86, p.1044.
 б) Olah G.A., Kuhn S.J., Hardie B.A. *J.Amer. Chem. Soc.*, 1964, 86, p.1055.
33. Вахмель В.М. и др. *Радиохимия*, 1976, 18, с.886.
34. Количковски А., Норсеев Ю.В. *ОНЯИ*, Р6-6923, Дубно, 1973.
35. Бочварова М. и др. *Радиохимия*, 1972, 14, с.858.
36. Krust E.J., Schuller M. *J.Chromatogr.*, 1975, 114, p.207.
37. Machutta H.-J., Laufer P., Stocklin G. *J.Radioanal. Chem.*, 1976, 32, p.381.
38. Hey D.H., Orman S., Williams G. *J.Chem. Soc.*, 1962, p.565.
39. Coenen H.H. et al. *Abstracts of the 9th International Hot Atom Chemistry Symposium, Blackburg, Virginia, USA, Sept, 19-23, 1977, p.78.*
40. Stocklin G. in: *Hot Atom Chemistry Status Report, IAEA, Vienna, 1975, p.161.*
41. Wibant J.P., Van de Lande L.M., Wallagh G. *Rec. Trav. Chim.*, 1933, 52, p.794.
42. Engelsma J.W., Kooyman E.C., Van der Bij J.R. *Rec. Trav. Chim.*, 1957, 76, p.325.
43. Cramer J.A., Rowland F.S. *J.Amer. Chem. Soc.*, 1974, 96, p.6578.

Рукопись поступила в редакционный отдел
16 января 1979 года.