

С 413Г  
Б-189

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P12 - 3886



Г.Ю.Байер, В.А.Халкин, Х.Гроссе-Рюкен

БЫСТРЫЕ РАДИОХИМИЧЕСКИЕ РАЗДЕЛЕНИЯ,  
ОСНОВАННЫЕ НА ЭФФЕКТЕ СЦИЛЛАРДА-ЧАЛМЕРСА  
В КОМПЛЕКСАХ ЛАНТАНИДОВ  
С ПОЛИАМИНОКАРБОНОВЫМИ КИСЛОТАМИ

1. Разделение генетически связанных  
изобарных и изомерных пар

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

1968

Быстрые радиохимические разделения, основанные на эффекте Сцилларда-Чалмерса в комплексах лантанидов с полиаминокарибоновыми кислотами

1. Разделения генетически связанных изобарных и изомерных пар.

На основе эффекта Сцилларда-Чалмерса в комплексах лантанидов с этилендиаминтетрауксусной кислотой (ЭДТА) и диэтиленetriаминпентауксусной кислотой (ДТПА) разработаны однократная и непрерывная методики разделения генетически связанных изобарных и изомерных пар лантанидов. Лучшие результаты были получены с ДТПА; при однократных разделениях  $^{184}\text{Ce} / ^{184}\text{La}$ ,  $^{140}\text{Nd} / ^{140}\text{Pr}$  и  $^{160}\text{Ho}^m / ^{160}\text{Ho}^s$  выходы препаратов дочерних изотопов были около 70%, а загрязнения материнскими изотопами 0,05% - 0,5%. При непрерывном отделении  $^{140}\text{Pr}$  от  $^{140}\text{Nd}$ , адсорбированного в форме комплекса с ДТПА на анионообменной колонке, выходы дочернего изотопа были  $30 \pm 15\%$ , а загрязнения  $0,25 \pm 0,05\%$ .

Препринт Объединенного института ядерных исследований.  
Дубна, 1968.

Fast Radiochemical Separations Based on the Szilard-Chalmers-Effect in Lanthanide Complexes with Polyamine-polycarboxylic Acids. I. Separation of Genetically Coupled Isobar and Isomer Pairs

The batch and continuous methods for separating genetically coupled isobar and isomer lanthanide pairs have been developed based on the Szilard-Chalmers-effect in lanthanide complexes with ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA) and diethylenetriaminepentaacetic acid (DTPA). Better results have been obtained using DTPA. In the case of the batch method the separations of  $^{184}\text{Ce}/^{184}\text{La}$ ,  $^{140}\text{Nd}/^{140}\text{Pr}$  and  $^{160}\text{Ho}^m/^{160}\text{Ho}^s$  the yield of daughter isotopes was 70%, whereas mother isotope admixture was 0,05% - 0,5%. In the case of continuous separation  $^{140}\text{Pr}$  from  $^{140}\text{Nd}$  adsorbed as a complex with DTPA using an anion exchange column, the yield of the daughter isotope was  $30 \pm 15\%$ , whereas the admixture was  $0,25 \pm 0,05\%$ .

Preprint. Joint Institute for Nuclear Research.  
Dubna, 1968



P12 - 3886

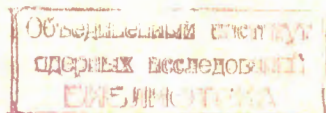
Г.Ю.Байер, В.А.Халкин, Х.Гроссе-Рюкен \*

БЫСТРЫЕ РАДИОХИМИЧЕСКИЕ РАЗДЕЛЕНИЯ,  
ОСНОВАННЫЕ НА ЭФФЕКТЕ СЦИЛЛАРДА-ЧАЛМЕРСА  
В КОМПЛЕКСАХ ЛАНТАНИДОВ  
С ПОЛИАМИНОКАРБОНОВЫМИ КИСЛОТАМИ

1. Разделение генетически связанных  
изобарных и изомерных пар

Направлено в 'Journal  
of Inorganic and Nuclear Chemistry'

\* Технический университет (Дрезден).



4386/1 up

Schnelle radiochemische Trennoperationen auf der Grundlage von Szilard-Chalmers-Effekten bei Komplexen der Lanthaniden mit Polyaminokarbonsäuren. I. Trennung genetisch verknüpfter isobarer und isomerer Nuklidpaare

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Anwendung von Szilard-Chalmers-Effekten bei Chelatkomplexen der Lanthaniden (SE) mit Äthylendiamintetraessigsäure (EDTA) und Diäthylentriaminpentaessigsäure (DTPA) zur schnellen präparativen Trennung genetisch verknüpfter isobarer und isomerer Nuklidpaare der SE. Es wird eine diskontinuierliche und eine kontinuierliche Trennmethode beschrieben.

Bei der diskontinuierlichen Methode wird das Mutternuklid in wässriger Lösung vollständig durch EDTA oder DTPA komplexiert; die sich beim radioaktiven Zerfall des Mutterkernes bildenden Tochteratome stabilisieren sich als nichtkomplexierte  $SE^{3+}$ -Ionen. Die aus dem Komplex austretenden Tochterprodukte werden an einem starksauren Kationenaustauscher (Wofatit KPS, Dowex 50, KY-2) sorbiert. Die eigentliche Abtrennung des Tochterpräparates erfolgt durch Abfiltrieren des Ionenaustauschers.

Für beide Komplexbildner ist die radiochemische Reinheit der abgetrennten Tochterpräparate pH-abhängig (Abb.1). Die besseren Resultate werden mit DTPA erhalten, die Verunreinigung der abgetrennten Tochterpräparate durch die Mutternuklide beträgt 0,05 bis 0,5% (Abb.2,3,4). Bei Verwendung von EDTA ist der Verunreinigungsanteil bis zu 10 mal grösser. Die Ausbeute an Tochterkernen beträgt für beide Komplexbildner für die Trennung der isobaren Paare  $^{134}Ce / ^{134}La$ ,  $^{140}Nd / ^{140}Pr$  und des isomeren Paares  $^{160m}Ho / ^{160g}Ho$  einheitlich 70% und ist bei kleinen Isotopenaustauschraten pH-unabhängig. Die Abtrennung von Tochterpräparaten aus der Komplexlösung des Mutternuklides kann in kurzen Zeitabständen beliebig oft wiederholt werden. Diese periodische Trennmethode ist geeignet zur Gewinnung reiner Tochterpräparate mit einer Halbwertszeit  $T_{1/2} \geq 3$  min, z.B. zur Messung von  $\gamma$ -Spektren, wenn das Mutternuklid  $T_{1/2} \geq 1$  h besitzt.

Bei der kontinuierlichen Trennmethode wird das mit DTPA komplexierte Mutternuklid ( $T_{1/2} \geq 1$  h) an einem starkbasischen Anionenaustauscher (Wofatit SBW, Dowex 1) sorbiert. Die Tochterprodukte stabilisieren sich nach Zerfall des Mutternuklides in Ionenform und werden kontinuierlich mit einer  $10^{-6}$  m  $SE^{3+}$ -Trägerlösung bei pH = 7 aus der kleinen Kolonne eluiert. Bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,12 bis 0,15 ml  $min^{-1}$  treten die Tochterprodukte 10 Sekunden nach ihrer Bildung aus der Säule aus. Die Ausbeute betrug bei dieser Methode für die Trennung des Paares  $^{140}Nd / ^{140}Pr$   $(30 \pm 15)\%$ . Die Verunreinigung des Tochterpräparates durch das Mutternuklid war 0,2-0,3% bei 0°C. Die kontinuierliche Trennmethode gestattet die Untersuchung von  $\gamma$ -Spektren reiner Tochternuklide der SE mit  $T_{1/2} \geq 5$  sek.

## Введение

Исследования короткоживущих изотопов лантанидов ( $T_{1/2} < 30$  мин) методами ядерной спектроскопии в ряде случаев требуют быстрых разделений генетически связанных изобарных и изомерных пар. В применении к редкоземельным элементам (р.з.э.), обладающим очень близкими химическими свойствами, это довольно трудная задача. Один из путей ее решения - использование для разделений эффекта Сцилларда-Чалмерса, когда в результате внутриядерного процесса разрушается химическая связь и образовавшийся атом или ион отделяется от исходной молекулы.

Для р.з.э. до последнего времени единственными соединениями, которые позволяли провести разделения на основе эффекта Сцилларда-Чалмерса, являлись фталоцианиновые комплексы р.з.э., впервые предложенные для этой цели Херром <sup>/1/</sup>. С этими соединениями были получены удовлетворительные результаты при разделении нескольких изобарных и изомерных пар <sup>/2,3,4/</sup> нейтронодефицитных изотопов р.з.э.

По данным Херра <sup>/1/</sup>, при работе с фталоцианинами р.з.э. практически не наблюдается обмена между закомплексованными лантанидами и свободными ионами в растворе. Это положительное свойство этих соединений. Однако ряд других качеств их в известной мере осложняет прове-

дение разделений с помощью фталоцианинов, и прежде всего - малая растворимость фталоцианиновых комплексов р.э.э. как в воде, так и в органических растворителях. Это и некоторые другие свойства фталоцианиновых комплексов лантанидов делали желательной их замену другими соединениями, не менее прочными, с медленной кинетикой изотопного обмена, но легко растворимыми в воде. Таким требованиям хорошо отвечают очень стабильные хелатные комплексы р.э.э. с полиаминокарбонowymi кислотами.

Из известных в настоящее время кислот этого типа самые устойчивые комплексы с р.э.э. образует диэтилентриаминпентауксусная кислота (ДТПА). Значения термодинамических констант устойчивости для большинства этих соединений лантанидов выше  $10^{22}$  <sup>/5/</sup>. Для аналогичных комплексов лантанидов с этилендиаминтетрауксусной кислотой (ЭДТА) константы устойчивости на три - пять порядков ниже <sup>/6/</sup>. Высокая устойчивость соединений  $L_n$  ДТПА, согласно исследованиям Глентворта <sup>/7/</sup> и Бетса <sup>/8/</sup>, обуславливает малую скорость изотопного обмена. По их данным, для комплексов  $L_n$  ДТПА она на два порядка меньше, чем для  $L_n$  ЭДТА.

Анализ данных работ <sup>/7/</sup> и <sup>/8/</sup> показывает, что и  $L_n$  ДТПА и  $L_n$  ЭДТА можно использовать для препаративных разделений изобарных и изомерных пар р.э.э. Однако, если судить по имеющимся публикациям, полиаминокарбонowe кислоты ранее не использовались для быстрых препаративных разделений лантанидов на основе эффекта Сцилларда-Чалмерса. Хотя предположения, например, о том, что ядерные изомеры гольмия можно было бы разделить с помощью ЭДТА, уже высказывались <sup>/9/</sup>. В другой работе <sup>/7/</sup>, посвященной исследованию химических эффектов, сопровождающих распад <sup>144</sup>Сe,



связанного в комплекс с различными полиаминокарбоновыми кислотами, были получены препараты, обогащенные дочерним  $^{144}\text{Pr}$ . По данным авторов, ретенция была различной для различных комплексов и зависела от рН.

С изобарной парой  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$  работал и Жюкова /10,11/. Используя воднометалльные растворы, он выделил около 40%  $^{144}\text{Pr}$ , образовавшегося при распаде  $^{144}\text{Ce}$ , связанного в комплекс с ЭДТА. Какой-либо зависимости ретенции от рН им не было замечено.

Целью настоящей работы являлось изучение возможности применения лантанидных комплексов ЭДТА и ДТПА для проведения быстрых и чистых радиохимических разделений различных изобарных и изомерных пар р.э.э. в области нейтронодефицитных ядер, где основным типом распада является К-захват или испускание позитронов.

## 2. Экспериментальная часть

2.1. Реактивы и радиоактивные изотопы. Использовалась ЭДТА производства "Реанал", Венгрия, имеющая не более 0,2% примесей. ДТПА была синтезирована на опытно-экспериментальном заводе ИРЕА, Москва. Содержание основного вещества в полученном реактиве равнялось 98,5%. Остальные реактивы были квалификации ч.д.а., и их дополнительная очистка не проводилась.

$^{144}\text{Ce}$  ( $T_{1/2} = 284,3$  д) был получен через контору "Изотоп". Дополнительная очистка препарата проводилась с помощью экстракции /12/.

$^{134}\text{Ce}$  ( $T_{1/2} = 72\text{ч}$ ),  $^{140}\text{Nd}$  ( $T_{1/2} = 3,3\text{ д}$ ),  $^{160}\text{Er}$  ( $T_{1/2} = 28,7\text{ч}$ ) выделялись из гадолиния, эрбия и тантала, облученных протонами с энергией 660 Мэв на внутреннем пучке синхроциклотрона в Дубне /13,14,15/.  $^{160}\text{Ho}^m$  ( $T_{1/2} = 5\text{ ч}$ ), практически моноизотопный препарат, был выделен хроматографически из фракции, содержащей нейтронодефицитные изотопы эрбия. Эта фракция была получена из танталовой мишени через два часа после конца облучения.

2.2. Однократное разделение генетически связанных изобарных и изомерных пар лантанидов. Растворы, содержащие полиаминокарбоновые комплексы материнских элементов, готовились по следующей схеме.

а) Раствор исходного радиоактивного препарата без носителя с рН от 8 до 3 был свободен от комплексообразователей, которые обычно используются при селективной хроматографии (лактат,  $\alpha$  - оксиизобутират и т.д.). Объем раствора меньше 4 мл.

б) К раствору добавляли 0,10 мл 0,010 М раствора ЭДТА или ДТПА, нейтрализованного  $\text{NH}_4\text{OH}$ .

в) С помощью  $\text{NH}_4\text{OH}$  рН раствора доводили до 8.

г) Раствор разбавляли до 5 мл и прибавляли к нему 0,12 мл 0,010 М раствора материнского элемента или любого лантанида.

При такой последовательности подготовки препарата к разделению все ионы радиоактивных изотопов, первоначально находившиеся в растворе, включаются в хелатные комплексы. Началом накопления дочернего элемента в ионной форме следует считать тот момент, когда количество



лантанида - носителя превышает содержание комплексообразователя в растворе.

Сразу же вслед за носителем в раствор добавляли 0,2 г сильноокислотного сульфокатионита (КУ-2, "Дауэкс-50") в  $\text{NH}_4^+$ -форме с диаметром зерна 0,1-0,2 мм и полученную суспензию энергично перемешивали на протяжении всего периода накопления. В наших опытах время накопления обычно было кратным периодам полураспада дочерних элементов. После истечения времени накопления смола с адсорбированными дочерними изотопами быстро отфильтровывалась от раствора, тщательно промывалась водой, сушилась ацетоном и в таком виде передавалась на измерения. Подготовка смолы к измерениям продолжалась не более минуты.

Из фильтрата можно было провести повторное выделение дочерних изотопов. Для этого к нему добавляли 0,02 мл 0,01М раствора лантанида-носителя и новую порцию катионита. Число таких повторных разделений практически не ограничено.

Оптимальная концентрация хелатных комплексов р.з.э. в растворах, подготовленных к выделению дочерних изотопов,  $2 \cdot 10^{-4}$ М. Она без ущерба для качества разделений может быть увеличена или уменьшена на порядок. Но концентрация лантанидов в ионной форме в этих растворах не должна превышать  $10^{-4}$ М. При соблюдении таких условий хорошие разделения могут быть получены при любых объемах растворов.

### 2.3. Непрерывное разделение генетически связанных изобарных и изомерных пар р. з. э.

Короткоживущие дочерние изотопы можно непрерывно отделять от относительно долгоживущих материнских с помощью небольшой колонки

( $d = 2$  мм,  $l = 15$  мм), заполненной сильноосновным анионитом. В наших опытах мы использовали аниониты SBW или "Дауэкс-1" с размером зерна 30-50  $\mu$ . Анионит переводился в  $[La \text{ ДТРА}]^{-2}$  - форму при медленной фильтрации через смолу ( $\approx 0,5$  мл/час) 10 мл 0,01М раствора хелатного комплекса р.з.э. с  $pH = 7$ . Далее колонка промывалась водой, после чего была готова к разделению.

Для синтеза радиоактивных комплексов к 0,1 мл препарата изучаемых изотопов без носителя добавляли 0,05 мл 0,01М раствора ДТРА и с помощью  $NH_4OH$   $pH$  увеличивали до 7-8. Раствор разбавляли до 1 мл и сорбировали радиоактивность на 5 мг анионита в  $Cl^{-}$  -форме. Смолу переносили в подготовленную колонку, промывали водой и начинали элюирование дочерних ядер  $10^{-6}$ М раствором лантанида-носителя. При скорости элюента 0,12-0,15 мл/мин дочерние изотопы выходили из колонки через 10 секунд после образования. Для улучшения чистоты дочерних препаратов колонка охлаждалась льдом.

#### 2.4. Определение выхода и чистоты радиоактивных препаратов дочерних изотопов

Оценки чистоты и выходов делались на основании данных, полученных при анализе кривых распада дочерних препаратов. Экстраполяцией кривых к моменту конца накопления  $t_0$  определяли суммарную радиоактивность  $J_1$  дочерних изотопов и загрязнений в это время.

Разложение кривых распада позволяло определить величину  $J_2$  - радиоактивность, связанную с загрязнением дочернего препарата материнскими изотопами, и радиоактивность дочерних изотопов.

Относительные загрязнения дочерних препаратов материнскими изотопами рассчитывали по формуле

$$V \% = \left( \frac{J_1}{J_2} \right)_{t_0} \cdot 100\% . \quad (1)$$

Для расчета относительных выходов дочерних изотопов использовалась формула

$$\Lambda \% = \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{\lambda_2} \cdot \frac{J_1 - J_2}{J_0} [\exp(-\lambda_1 \Delta t) - \exp(-\lambda_2 \Delta t)]^{-1} , \quad (2)$$

где  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  - радиоактивные постоянные материнского и дочернего изотопа соответственно;  $J_0$  - радиоактивность дочернего изотопа в препарате, взятом для разделения при достижении условий радиоактивного равновесия;  $\Delta t$  - продолжительность накопления.

Величина  $J_0$  определялась нами экспериментально для каждой изобарной пары с помощью стандартных препаратов материнских изотопов, сорбированных на смоле. При этом соблюдались условия, тождественные условиям измерения дочерних препаратов. При измерении радиоактивности  $^{144}\text{Pr}$  ( $T_{1/2} = 17,3$  ми) в препарате  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$  мягкое  $\beta^-$ -излучение материнского изотопа поглощалось алюминиевым фильтром  $20 \text{ мг/см}^2$ . Измерения радиоактивности дочерних изотопов в изобарных парах  $^{134}\text{Ce} / ^{134}\text{La}$  и  $^{140}\text{Nd} / ^{140}\text{Pr}$  проводились с помощью пропорционального счетчика  $\text{VA-z-520}$  (VEB Vakutronik ГДР), хорошо регистриро-



вавшего жесткое  $\beta^+$ -излучение  $^{134}\text{La}$  ( $T_{1/2} = 6,5$  мин) и  $^{140}\text{Pr}$  ( $T_{1/2} = 3,4$  мин) и малочувствительного к  $x^-$  и  $\gamma$ -излучению материнских изотопов.

Для изомерной пары  $^{160}\text{Ho}^m / ^{160}\text{Ho}^g$   $J_0$  экспериментально не определялась. Но исходя из известной схемы распада, энергий позитронов, испускаемых при распаде метастабильного и основного состояний  $^{160}\text{Ho}$  и поглощения позитронов в слое ионообменной смолы, мы рассчитали, что при наших условиях измерений относительный вклад основного состояния  $^{160}\text{Ho}^g$  ( $T_{1/2} = 25,6$  мин) в суммарное позитронное излучение препарата при достижении радиоактивного равновесия будет  $60 \pm 10\%$ . Эта величина в дальнейшем использовалась для вычисления  $J_0$  в опытах по разделению изомеров гольмия.

На изобарной паре  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$  нами изучалось влияние рН среды на чистоту и выход дочернего препарата. В этой серии опытов от раствора во время накопления 3-4 раза отбирали по 0,1 мл для определений рН. Измерения рН в столь малых объемах были возможны благодаря использованию плоского стеклянного электрода типа GA-60 (Forschungsinstitut Meinsberg - DDR).

### 3. Результаты и обсуждение

#### 3.1. Однократное разделение генетически связанных изобарных и изомерных пар

При разработке методов однократного разделения изобарных и изомерных пар лантанидов, основанных на эффекте Сцилларда-Чалмерса в

хелатных комплексах р.з.э. с ЭДТА и ДТПА, прежде всего необходимо было выяснить влияние рН -раствора на чистоту и выход дочерних препаратов. В качестве модельной пары в этой серии опытов мы использовали  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$ . Было найдено, что для данной пары изотопов выход не зависит от рН и для комплексов с ЭДТА равен 80%, а для ДТПА - 27,5%. Для обоих комплексообразователей четко наблюдается улучшение чистоты дочерних препаратов с ростом рН (рис.1). При работе с ЭДТА в интервале рН 7,3-8,2 загрязнение материнской радиоактивностью достигает 4%. Значительно лучше с препаративной точки зрения результаты, полученные с ДТПА. Для этого комплекса загрязнение около 0,3% остается постоянным в интервале рН 6,6-9,0. Кривые распада  $^{144}\text{Pr}$ , отделенного с помощью эффекта Сцилларда-Чалмерса от  $^{144}\text{Ce}$ , связанного в комплексы с ЭДТА (рН 8,25) и ДТПА (рН 7,0), показаны на рис.2.

На чистоте препаратов  $^{144}\text{Pr}$  практически не сказывается изменение температуры в интервале от 0°С до 25°С. Это позволяет сделать заключение, что при временах накопления  $t_0 \leq 30'$  можно разделения проводить при комнатной температуре. Но если накопление продолжается несколько часов, например, при разделении долгоживущих изомеров, для повышения чистоты дочернего препарата раствор следует охлаждать льдом.

Данные об оптимальных значениях рН, полученные при проведении экспериментов с  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$ , использовались для проведения разделения других пар ядер:  $^{184}\text{Ce} / ^{184}\text{La}$ ,  $^{140}\text{Nd} / ^{140}\text{Pr}$  (рис.3) и  $^{160}\text{Ho}^m / ^{160}\text{Ho}^g$  (рис.4). Выходы дочерних ядер при разделении нейтронодефицитных изобарных и изомерных пар были около 70% и не зависели от того, какой комплексообразователь использовался: ЭДТА или ДТПА. Загрязнение материн-

ской радиоактивностью при работе с ДТПА было от 0,05% до 0,5%, а в опытах с ЭДТА соответственно на порядок больше.

Разработанная методика однократного разделения изобарных и изомерных пар лантанидов, основанная на эффекте Сцилларда-Чалмерса в хелатных комплексах р.э.э. с ДТПА и ЭДТА, позволяет неограниченное число раз повторять отделение накопившегося дочернего изотопа или изомера от материнского. При таких повторных разделениях чистота полученных дочерних препаратов и их выход не изменяются.

В одном из разделений радиоактивность исходного препарата  $^{134}\text{Ce}$  /  $^{134}\text{La}$  превышала  $5\text{ мсi}$ . Но препараты  $^{134}\text{La}$ , выделенные с использованием ДТПА, имели загрязнение материнской радиоактивностью 0,2% — практически такое же, как и в опытах, в которых радиоактивность была на два порядка ниже. Этот результат указывает на относительно высокую радиационную устойчивость комплексов лантанидов с ДТПА.

Разработанная нами простая методика однократного разделения изобарных и изомерных пар лантанидов позволяет отделять дочерние изотопы с периодом полураспада 3 минуты и более от относительно долгоживущих ( $T_{1/2} \geq 1$  час) материнских. В настоящее время она, очевидно, является наиболее удобной для отделения основных состояний от метастабильных в генетически связанных изомерах р.э.э.

### 3.2. Непрерывное разделение

Методика непрерывного разделения генетически связанных пар лантанидов с помощью анионообменной колонки была использована для выделе-



ния  $^{140}\text{Pr}$ , образующегося при распаде  $^{140}\text{Nd}$ . Эффлюент содержал 30+15% дочерних ядер - выход был в 2-4 раза ниже, чем при однократном разделении. Загрязнение материнской радиоктивностью было 0,2-0,3%. В потоке элюента ионы  $^{140}\text{Pr}$  через 10-20 секунд после их образования могли быть перенесены к детектору гамма-спектрометра. При таком оформлении разделения становятся доступными для гамма-спектральных измерений дочерние изотопы с периодом полураспада около 5 секунд и более. Так как в данном случае снимается гамма-спектр непрерывно протекающей около детектора жидкости, время измерений ограничено только периодом полураспада материнского изотопа и его потерями с эффлюентом, связанными с изотопным обменом. Непрерывная методика не применялась для разделения ядерных изомеров. Но поскольку опыты по однократным разделениям показали, что загрязнения и выходы получаются одинаковыми при К-захвате и изомерном переходе, постольку можно сделать заключение о том, что все сказанное выше для пары  $^{140}\text{Nd}/^{140}\text{Pr}$  будет справедливо для любой изомерной пары с сильноконвертированным переходом.

В заключение мы хотели бы заметить, что использование комплексов металлов с ЭДТА и ДТПА для разделения изобарных и изомерных пар на основе эффекта Сцилларда-Чалмерса перспективно не только для лантанидов, но и для многих элементов, образующих прочные комплексы ( $\lg \beta > 16$ ) с полиаминокарбоновыми кислотами.

#### 4. ВЫВОДЫ

1. Исследованы условия быстрых разделений генетически связанных изобарных и изомерных пар лантанидов, основанных на эффекте Сцилларда-Чалмерса в хелатных комплексах р.э.э. с ЭДТА и ДТПА.

2. Разработаны методики однократных и непрерывных разделений. Однократные разделения удобны для получения препаратов дочерних изотопов с  $T_{1/2} > 3$  мин. Непрерывная методика делает доступными для гамма-спектрометрических измерений изотопы с  $T_{1/2} \geq 5$  сек.

3. Эти методики были успешно применены для отделения  $^{144}\text{Pr}$  от  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{134}\text{La}$  от  $^{134}\text{Ce}$ ,  $^{140}\text{Pr}$  от  $^{140}\text{Nd}$  и  $^{180}\text{Ho}^{\text{в}}$  от  $^{180}\text{Ho}^{\text{м}}$ .

4. Для всех нейтронодефицитных изотопов р.э.э., с которыми проводились исследования, выходы дочерних препаратов были одинаковы при работе с ЭДТА и ДТПА и составляли около 70%. Загрязнение дочерних препаратов материнской радиоактивностью было 0,05-0,5% при распаде изотопов, связанных в комплекс с ДТПА, при  $\text{pH}$  раствора  $\approx 8$ , а в случае ЭДТА при  $\text{pH}$  8,25 - на порядок больше.

#### Л и т е р а т у р а

1. W.Herr. *Angew. Chem.*, 65, 303 (1953).
2. B.Jung, T.Sternström. *Nucl. Phys.*, 64, 209 (1965).
3. T.Sternström. *Radioch. Acta.*, 4, 3 (1965).
4. E.Herrmann, G.Pfrepper, D.Christow. *Radioch. Acta*, 7, 10 (1967).
5. T.Moeller, L.C.Thompson. *J.Inorg. Nucl. Chem.*, 24, 499 (1962).
6. E.J.Wheelwright; F.J.Spedding, G.Schwarzenbach. *J. Am. Chem. Soc.*, 75, 4196 (1953).

7. P.Glantworth, B.Wiseall. *Symposium of Chemical Effects Associated with Nuclear Reactions and Radioactive Transformations*, Vienna, 7-11. December 1964, IAEA II, 483 (1965).
8. R.H.Betts, O.F.Dahlinger, D.M.Munro. *Proceedings of the First UNESCO International Conference Paris, 1957, volume II*, p.326, Pergamonpress, New York, 1958.
9. Ю.А.Макажев, И.Е.Макажева, В.А. Мельников. *Радиохимия*, 8 (3), 371 (1966).
10. T.Shiokowa, T.Omori, H.Kudo. *Bull. Chem. Soc. Japan.*, 38(8), 1340 (1965).
11. T.Shiokowa, T.Omori. *Bull. Chem. Soc. Japan.*, 38 (11), 1892 (1965).
12. D.F.Peppard, G.W.Mason, S.W.Moline. *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 5, 141 (1957).
13. Ф.Молнар, А.Хорват, В.А.Халкин, В.А.Волков. *Радиохимия* 8(2), 183 (1966).
14. Э.Херрманн, Х.Гроссе-Рюкен, Н.А.Лебедев, В.А.Халкин. *Радиохимия*, 6 (6), 756 (1964).
15. В.И.Барановский, А.Н.Мурин. *Известия АН СССР, сер.физ.*, 25 (7), 882 (1961).
16. Б.С.Джелепов, Л.К.Пекер, В.О.Сергеев. *Схемы распада радиоактивных ядер*, АН СССР, Москва-Ленинград, 1963.

Рукопись поступила в издательский отдел  
22 мая 1968 года.



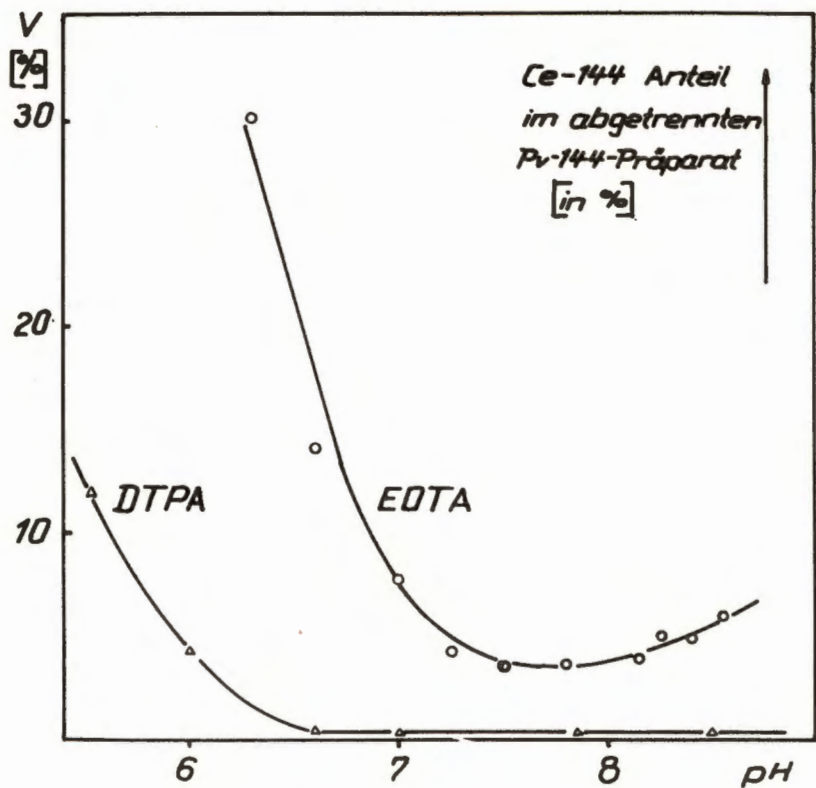


Рис.1. Зависимость от pH относительных загрязнений препаратов  $^{144}\text{Pu}$  материнской радиоактивностью  $^{144}\text{Ce}$  при разделениях, основанных на эффекте Сцилларда-Чалмерса в комплексах церия с ЭДТА и ДТПА.

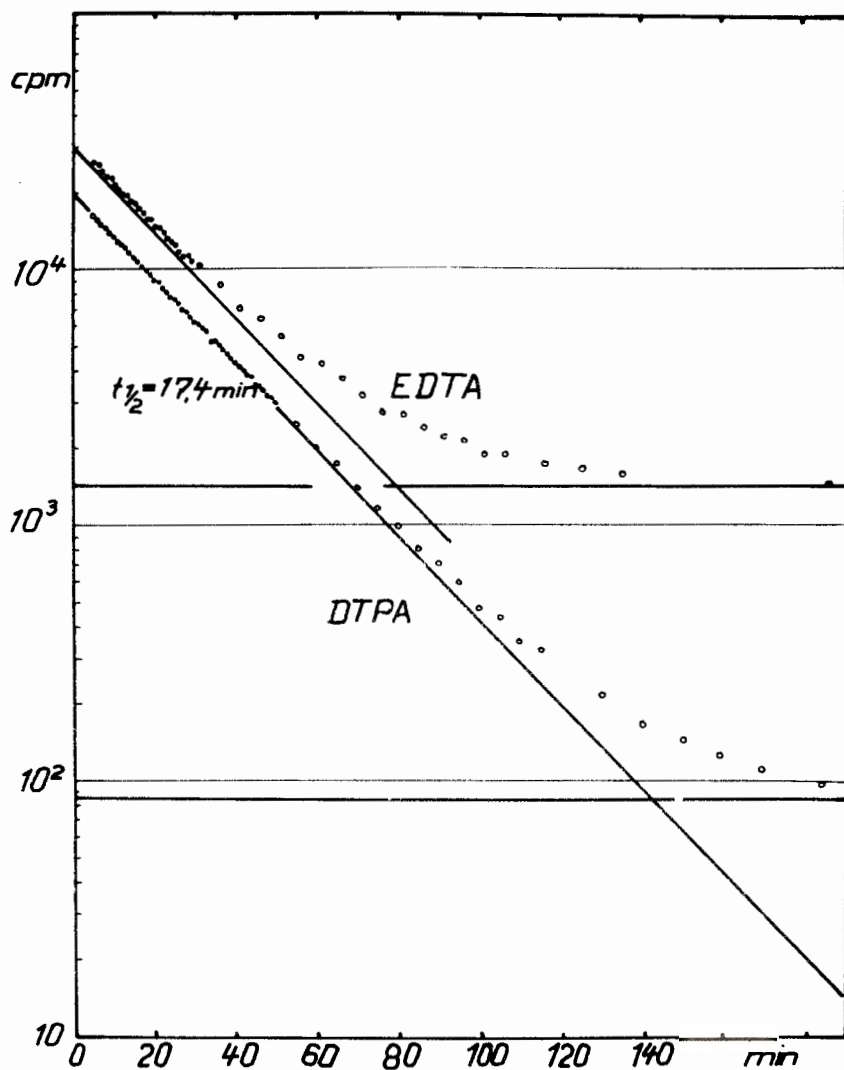


Рис.2. Кривые распада <sup>144</sup>Pr, отделенного от <sup>144</sup>Ce с помощью эффекта Сцилларда-Чалмерса в комплексах церия с ЭДТА и ДТРА.

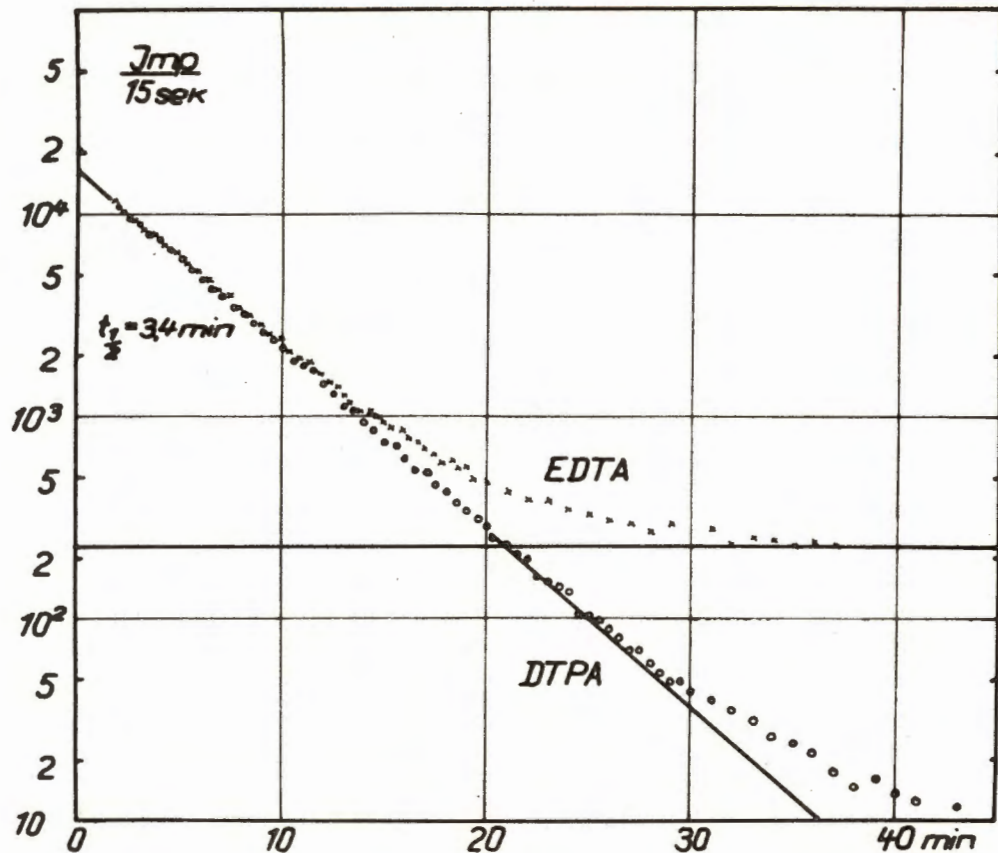


Рис.3. Кривые распада  $^{140}\text{Pr}$ , отделенного от  $^{140}\text{Nd}$  с помощью эффекта Шилларда-Чалмерса в комплексах неодима с ЭДТА и ДТРА.

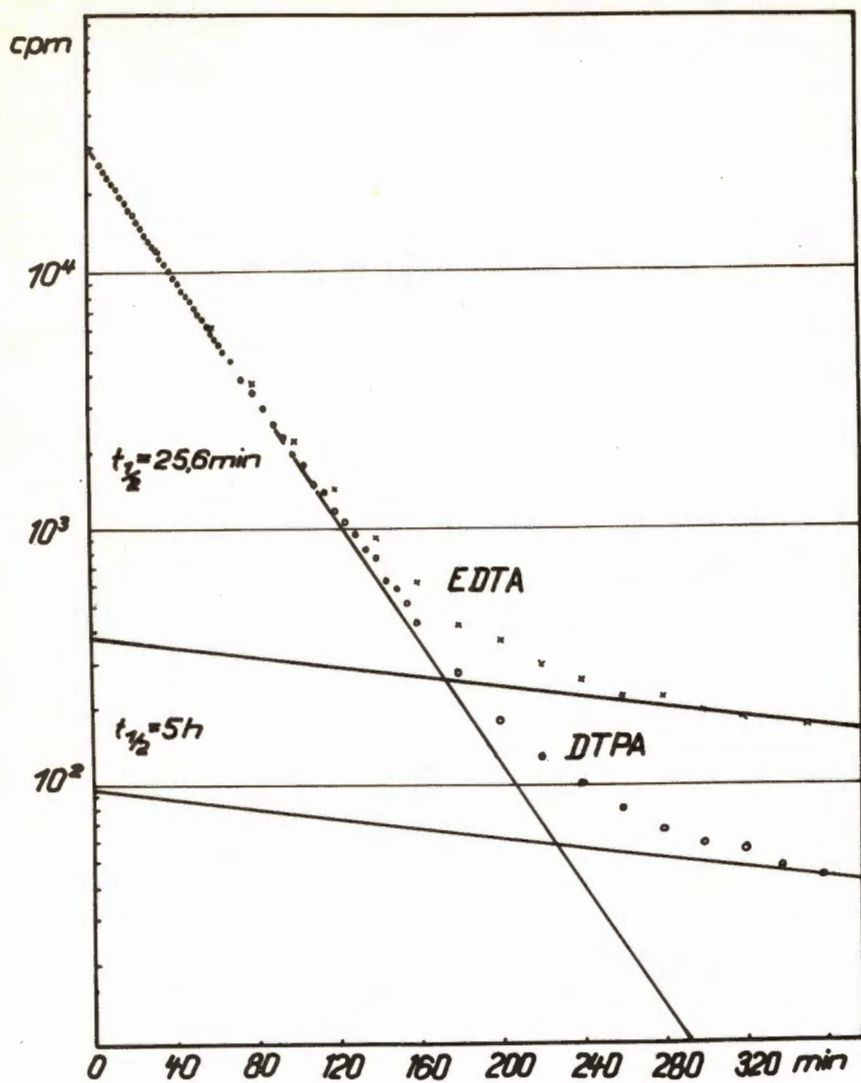


Рис.4. Кривые распада  $^{160}\text{Ho}^{\text{III}}$ , отделенного от  $^{160}\text{Ho}^{\text{m}}$  с помощью эффекта Сцилларда-Чалмерса в комплексах гольмия с ЭДТА и ДТРА.