

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



3-177

18/41-74

P6-8103

4513/2-74

Н.Г.Зайцева, Х.М.Исламова, Нгуен Гуннь Май

**ХИМИЧЕСКОЕ ПОВЕДЕНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ
АТОМОВ ЦИРКОНИЯ И ИТТРИЯ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПРОТОНАМИ С ЭНЕРГИЕЙ 660 МЭВ
НЕКОТОРЫХ ФТОРИРОВАННЫХ БЕТА- ДИКЕТОНАТОВ**

1974

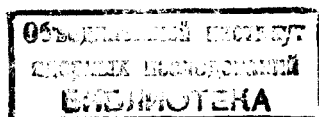
ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

P6-8103

Н.Г.Зайцева, Х.М.Исламова, Нгуен Гуинь Май

**ХИМИЧЕСКОЕ ПОВЕДЕНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ
АТОМОВ ЦИРКОНИЯ И ИТТРИЯ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПРОТОНАМИ С ЭНЕРГИЕЙ 660 МЭВ
НЕКОТОРЫХ ФТОРИРОВАННЫХ БЕТА- ДИКЕТОНАТОВ**

Направлено в журнал Radiochem.
and Radioanal. Lett.



S u m m a r y

The chemical behaviour of ^{86}Zr and $^{87\text{m}}\text{Y}$ atoms formed in zirconium and yttrium beta-diketonates irradiated with high energy protons has been studied using liquid chromatography and vacuum sublimation. It is shown that the yield of the different chemical forms depends on the type of beta-diketonate, on the presence of tributylphosphate (TBP) as organophosphorus down in the solution and on the aggregate state of the chelates by the irradiation.

The results obtained confirm the great importance of thermal reactions of "hot" atoms.

При изучении химических эффектов ядерных превращений в облученных бета-дикетонатах металлов большая часть сведений до последнего времени была получена для комплексов с ацетилацетоном - простейшим в этом классе соединений комплексообразователем /см. в /1/ /. О химическом поведении радиоактивных атомов, возникающих при облучении систем, содержащих фторированные лиганды, первые результаты были опубликованы в работе /2/, где было показано, что в облученных суспензиях металлических порошков Zr или Nb в растворах ацетилацетона, трифторацетилацетона и гексафторацетилацетона стабилизация радиоактивных атомов Zr и Y с образованием соответствующих меченых хелатов протекает в различной степени в зависимости от типа бета-дикетона: на 15-25% в ацетилацетоне и на 40-80% во фторированных бета-дикетонах.

Настоящая работа является продолжением наших исследований /2/, и цель ее заключается в изучении химического поведения радиоактивных атомов Zr и Y, образующихся при облучении высокоэнергетическими протонами фторированных бета-дикетонатов этих элементов, с тем, чтобы оценить влияние степени фторирования хелата на химические формы стабилизации радиоактивных атомов. В последнее время фторированные бета-дикетонаты металлов привлекают все большее внимание исследователей из-за своих физико-химических свойств /высокая термическая стабильность, летучесть/, что явилось весьма существенным для применения их в аналитических целях /3,4/. Изучение поведения радиоактивных атомов в тех или иных условиях опыта позволит оценить возможность использования этих соединений

в радиохимической практике в качестве мишеней для облучения и последующего выделения из них радиоактивных продуктов.

Экспериментальная часть

В табл. 1 приведены бета-дикетонаты Zr и Y, которые были синтезированы нами по известным методикам /5,6/ и служили в качестве облучаемых соединений. Бета-дикетонаты Н/ТФАА/ и Н/ГФАА/ были марки Koch-Light Lab, LTD, Colnbrook-Bucks, Engl.; Н/ТФА-и-ВМ/ и Н/ТФА-и-ВМ/ - марки Eastman Kodak Co., USA. Хелаты Zr/ТФА-и-ВМ/4 и Y/ТФА-и-ВМ/4 впервые синтезированы нами. Они представляют собой белые кристаллы, хорошо растворимые в органических растворителях (C₆H₆, CCl₄, CHCl₃, C₆H₁₂).

Таблица I
Некоторые фторированные бета-дикетонаты Zr и Y.

Исходный бета-дикетон	Формула и мол.вес	Бета-дикетонат (сокращенное обозначение)	Температура плавления, °C	
			наши определения	литературные данные
Трифтор-ацетил-ацетон	CF ₃ COCH ₂ COCH ₃ 154,0	Zr(ТФАА) ₄ Y(ТФАА) ₃	128-129	128-130 [6]
			135-136	146-148 [7] 132 [8]
Трифтор-ацетил-изо-бутирил-метан	CF ₃ COCH ₂ COCH(CH ₃) ₂ 182,1	Zr(ТФА-и-ВМ) ₄	86-87	нет
Трифтор-ацетил-изо-валерил-метан	CF ₃ COCH ₂ COCH ₂ CH(CH ₃) ₂ 196,7	Zr(ТФА-и-ВМ) ₄	68-69	нет
Гексафтор-ацетил-ацетон	CF ₃ COCH ₂ COCF ₃ 208,0	Zr(ГФАА) ₄ Y(ГФАА) ₃	145	152-154 [9] 39-42 [10]
			135-137	142-144 [7]

Методика подготовки и облучения образцов, хроматографического и сублимационного разделения химических форм радиоактивных атомов Zr и Y и их радиометрической идентификации на основе поведения ⁸⁶Zr и ^{87m}Y подробно описана в работе /1/.

Облучение хелатов проводилось на выведенном пучке протонов с энергией 660 МэВ и интенсивностью 10¹¹ протон/сек при общем потоке за время облучения 6.10¹⁵ протон/см² и, соответственно, дозе 1,8.10⁷ рад. Кристаллические образцы облучались в вакуумированных ампулах. Растворителем для приготовления растворов хелатов, а также для элюирования хелатных форм из хроматографической колонки служил бензол. В ряде опытов, исходя из известных данных о синергетическом эффекте органофосфорных аддуктов /11-13/, мы изучали влияние трибутилфосфата /ТБФ/ на хроматографическое распределение химических форм ⁸⁶Zr и ^{87m}Y, используя 0,1М раствор очищенного ТБФ в C₆H₆.

Для оценки степени образования хелатных молекул ⁸⁶Zr и ^{87m}Y мы использовали так же, как и в случае с ацетилацетонатами /1/, метод вакуумной сублимации кристаллов. Оптимальные условия сублимации были найдены предварительно для каждого хелата, они приведены ниже в табл. 4. Этот метод дает возможность исключить вторичные эффекты, которые могут возникать при растворении хелатов. Однако использованный метод хроматографического разделения химических форм позволяет нам сравнить поведение радиоактивных атомов при облучении суспензий порошков металлов в бета-дикетонатах /2/ и в облученных бета-дикетонатах /настоящая работа/.

Результаты и их обсуждение

Экспериментальные результаты, полученные при хроматографическом разделении химических форм радиоактивных атомов Zr и Y, образующихся при облучении бета-дикетонатов, представлены в табл. 2, где приве-

Таблица 2

Распределение ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ (%), образующихся при облучении бета-дикетонатов Zr и Y, между отдельными химическими формами при их хроматографическом разделении.

Хелат	Агрегатное состояние хелата при облучении	Me L_n		$[\text{Me L}_{n-m}]^{m+}$	
		^{86}Zr	$^{87\text{m}}\text{Y}$	^{86}Zr	$^{87\text{m}}\text{Y}$
$\text{Zr}(\text{ТФАА})_4$	кристаллы	$9,6 \pm 2,6$	0	$12,6 \pm 5,6$	$74,2 \pm 3,1$
	раствор	$13,7 \pm 2,3$	$34,1 \pm 4,5$	$11,3 \pm 0,6$	$41,5 \pm 0,8$
$\text{Zr}(\text{ТФА-изо-БМ})_4$	кристаллы	$48,1 \pm 0,2$	$3,4 \pm 3,4$	$12,4 \pm 1,4$	$56,1 \pm 2,4$
	раствор	$29,1 \pm 1,1$	$4,4 \pm 4,4$	$37,8 \pm 8,8$	$68,6 \pm 0,2$
$\text{Zr}(\text{ТФА-изо-БМ})_4$	кристаллы	$40,6 \pm 1,4$	$2,7 \pm 0,2$	$7,9 \pm 2,1$	$63,7 \pm 2,1$
	раствор	$30,0 \pm 3,8$	$2,1 \pm 2,1$	$29,7 \pm 0,4$	$60,3 \pm 2,8$
$\text{Zr}(\text{ГФАА})_4$	кристаллы	$24,2 \pm 2,0$	0	$14,3 \pm 4,1$	$78,7 \pm 5,1$
	раствор	$18,5 \pm 3,9$	$8,2 \pm 0,2$	$15,1 \pm 2,7$	$80,1 \pm 4,4$
$\text{Zr}(\text{АА})_4 [\text{I}]$	кристаллы	$14,0 \pm 0,8$	$26,4 \pm 1,2$	$9,1 \pm 2,0$	$17,2 \pm 1,1$
	раствор	$22,8 \pm 8,9$	$36,5 \pm 8,0$	$12,8 \pm 5,7$	$17,2 \pm 4,9$
$\text{Y}(\text{ТФАА})_3$	кристаллы	$43,0 \pm 5,0$	$4,8 \pm 0,2$	$44,7 \pm 7,1$	$50,4 \pm 3,2$
	раствор	$11,0 \pm 4,0$	$12,0 \pm 1,8$	$50,4 \pm 1,3$	$40,5 \pm 3,9$
$\text{Y}(\text{ГФАА})_3$	кристаллы	$17,6 \pm 1,4$	0	$46,5 \pm 4,3$	$69,3 \pm 1,8$
	раствор	$26,1 \pm 10,7$	0	$55,6 \pm 13,6$	$60,7 \pm 1,8$
$\text{Y}(\text{АА})_3 [\text{I}]$	кристаллы	$41,3 \pm 6,0$	$21,3 \pm 6,3$	$22,0 \pm 5,5$	$12,7 \pm 5,4$
	раствор	$16,8 \pm 3,2$	$15,8 \pm 4,4$	$43,1 \pm 3,9$	$67,0 \pm 6,8$

дены величины, характеризующие стабилизацию ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ в форме материнских /хелатных/ молекул и в форме молекул с дефицитным числом лигандов, рассчитанные из соотношения:

$$P_{[\text{Me}^{n+}(\text{лиганд})_n]} + \sum_{m=1}^{m=n} P_{[\text{Me}^{n+}(\text{лиганд})_{n-m}]^{m+}} + P_{\text{Me}^{n+}} = 100\%$$

где P - доля ^{86}Zr или $^{87\text{m}}\text{Y}$ в соответствующей химической форме; $n_{\text{Zr}} = 4$, $n_{\text{Y}} = 3$; $n > m$.

Для сравнения даны результаты, полученные ранее для облученных ацетилацетонатов этих металлов /1/.

Приведенные величины являются среднеарифметическими значениями из числа $N \geq 3$ и даны со среднеквадратичной ошибкой.

Из результатов табл. 2 видно, что атомы ^{86}Zr при облучении фторированных хелатов Zr и Y стабилизируются в форме хелатных молекул $\text{Zr}(\text{L})_4$ с наибольшим выходом /40-45%/ в облученных кристаллах $\text{Zr} / \text{ТФА-и-БМ} /_4$, $\text{Zr} / \text{ТФА-и-БМ} /_4$ и $\text{Y} / \text{ТФАА} /_3$, т.е. в хелатах с несимметричной или более разветвленной структурой; для других же фторированных хелатов эта величина колеблется в интервале 10-30%. Относительно высокий выход $^{86}\text{Zr} / 40-50\%$ в форме с дефицитным содержанием лигандов наблюдался для фторированных бета-дикетонатов иттрия, т.е. в отсутствие макроколичеств изотопного вещества.

Что касается поведения $^{87\text{m}}\text{Y}$, то видно, что его атомы стабилизируются преимущественно в формах с дефицитом лигандов и в очень незначительной степени - в хелатной форме, за исключением раствора $\text{Zr} / \text{ТФАА} /_4$.

При сравнении хроматографического поведения ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ в облученных бета-дикетонатах видно, что наиболее заметное влияние CF_3 -групп, входящих в молекулу хелата, наблюдается для атомов $^{87\text{m}}\text{Y}$: во всех фторированных хелатах, независимо от степени их фторирования /ТФАА и ГФАА/, радиоактивные атомы Y стабилизируются преимущественно в формах $(\text{YL}_{n-m})^{m+}$.

Сравнение выходов хелатных форм радиоактивных атомов Zr и Y при облучении бета-дикетонатов металлов /табл. 2/ и суспензий порошков $\text{Zr}_{\text{мет.}}$ и $\text{Nb}_{\text{мет.}}$ в растворах бета-дикетонатов /АА, ТФАА и ГФАА/ /2/ показывает, что ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ стабилизируются с наибольшим выходом в суспензиях фторированных бета-дикетонатов /70-80%/ по сравнению с Н/АА/ /~20%/; для самих же бета-дикетонатов такого эффекта CF_3 -групп не наблюдается. Это происходит за счет того, что CF_3 -группы, обладающие большим электронным сродством, не усиливают устойчивости фторированных бета-дикетонатов к реакциям расщепления при растворении /14,15/. Таким образом, полученные результаты показывают, что влияние фторметильных групп в рассмотренных фторированных

системах проявляется не всегда, а только в определенных условиях.

Результаты, полученные при изучении влияния ТБФ на распределение ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ среди химических форм хроматографическим методом, представлены в табл. 3.

Сравнивая эти результаты с данными табл. 2, можно сделать вывод о том, что введение ТБФ в растворитель особенно заметно влияет на поведение $^{87\text{m}}\text{Y}$: так, его выход в хелатной форме увеличивается, с дефицитом лигандов уменьшается, а в ионной форме изменяется в незначительной степени. На распределение ^{86}Zr по химическим формам присутствие ТБФ мало влияет в случае $\text{Zr}/\text{ТФАА}/_4$, но оно существенно сказывается для хелатов $\text{Y}/\text{ТФАА}/_3$ и $\text{Y}/\text{ГФАА}/_3$.

Полученные результаты позволяют сказать, что действие ТБФ наиболее заметно проявляется, как и при жидкостной экстракции, в тех случаях, когда хелат гидратирован: для иттрия известно, что его хелаты, как и хелаты других редкоземельных элементов, содержат в своей координационной сфере молекулы воды, которые трудно удалить ^{/16/}, для циркония же безводные хелаты методически получить достаточно легко ^{/17/}.

Результаты табл. 2 и 3 показывают, что в зависимости от исходного хелата выход образцов ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ с полным и дефицитным числом лигандов в одних случаях выше при облучении хелатов в твердом состоянии, чем при облучении растворов, в других случаях он ниже или одинаков в пределах ошибок опыта.

О химических формах стабилизации радиоактивных атомов Zr и Y , получаемых вакуумной сублимацией кристаллов, можно судить по данным табл. 4 и рис. 1,2.

Результаты, полученные при сублимации необлученных и облученных образцов и показывающие степень перехода макроколичества вещества в сублимат, говорят о том, что исходные образцы $\text{Zr}/\text{ГФАА}/_4$ и $\text{Y}/\text{ТФАА}/_3$ среди других исследованных нами хелатов характеризуются меньшей летучестью: $\text{Y}/\text{ТФАА}/_3$ дей-

Таблица 3

Стабилизация ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ (%) в различных химических формах в присутствии ТБФ (0,1 М ТБФ в C_6H_6).

Хелат	Агрегатное состояние хелата при облучении	MeL_n		$[\text{MeL}_{n-m}]^{m+}$		Me^{n+}	
		^{86}Zr	$^{87\text{m}}\text{Y}$	^{86}Zr	$^{87\text{m}}\text{Y}$	^{86}Zr	$^{87\text{m}}\text{Y}$
$\text{Zr}(\text{ТФАА})_4$	кристаллы	19,1± 3,3	72,7± 4,2	10,6± 0,1	6,4± 1,8	70,2± 3,4	20,8± 2,4
	раствор	9,7± 1,4	42,0± 0,5	21,8± 7,9	17,2± 4,3	40,4± 9,3	40,4± 2,4
$\text{Y}(\text{ТФАА})_3$	кристаллы	55,2,1± 5,0	75,2± 3,3	47,9± 5,0	2,3± 0,8	0	22,5± 4,1
	раствор	77,0± 2,0	66,7± 0,8	0	7,4± 2,4	23,2± 2,0	25,9± 1,5
$\text{Y}(\text{ГФАА})_3$	кристаллы	42,9± 6,2	70,4± 1,0	34,9± 3,1	7,2± 2,3	22,2± 3,1	22,4± 1,7
	раствор	52,4± 2,1	71,7± 1,0	10,8± 1,7	6,2± 0,1	36,8± 0,5	22,1± 0,9

Таблица 4

Выход летучих форм ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ (%) при сублимации кристаллов облученных фторированных бета-дикетонатов циркония и иттрия.

Хелат	^{86}Zr	$^{87\text{m}}\text{Y}$	Содержание макроколичеств вещества в сублимате (весовое определение)		Условия сублимации	
			облученный хелат	необлученный хелат	10^{-3} мм рт.ст.	час
$\text{Zr}(\text{ГФАА})_4$	$75,8 \pm 3,5$	$2,3 \pm 1,3$	$95,6 \pm 3,8$	$98,8 \pm 1,1$	100	0,5
$\text{Zr}(\text{ГФА-И-ВМ})_4$	$57,8 \pm 0,4$	0	$67,7 \pm 0,7$	$90,5 \pm 0,3$	80	2
$\text{Zr}(\text{ГФА-И-ВМ})_4$	$55,6 \pm 2,6$	$3,1 \pm 0,2$	$67,2 \pm 12,3$	$91,2 \pm 3,6$	70	2
$\text{Zr}(\text{ГФАА})_4$	$82,0 \pm 5,5$	$4,7 \pm 2,3$	$81,7 \pm 5,1$	$75,3 \pm 1,2$	120	1,5
$\text{Zr}(\text{АА})_4$ [I]	$49,0 \pm 2,5$	$11,6 \pm 3,6$	$86,4 \pm 2,0$	$98,9 \pm 0,5$	135	2
$\text{Y}(\text{ГФАА})_3$	$22,0 \pm 1,3$	$21,1 \pm 1,8$	$22,0 \pm 1,8$	$22,6 \pm 6,4$	105	1,5
$\text{Y}(\text{ГФАА})_3$	$69,9 \pm 4,3$	$62,3 \pm 2,0$	$68,0 \pm 7,1$	$99,1 \pm 0$	120	1,5
$\text{Y}(\text{АА})_3$ [I]	$4,5 \pm 1,8$	$2,4 \pm 1,4$	$11,8 \pm 1,4$	$13,7 \pm 0,4$	135	2

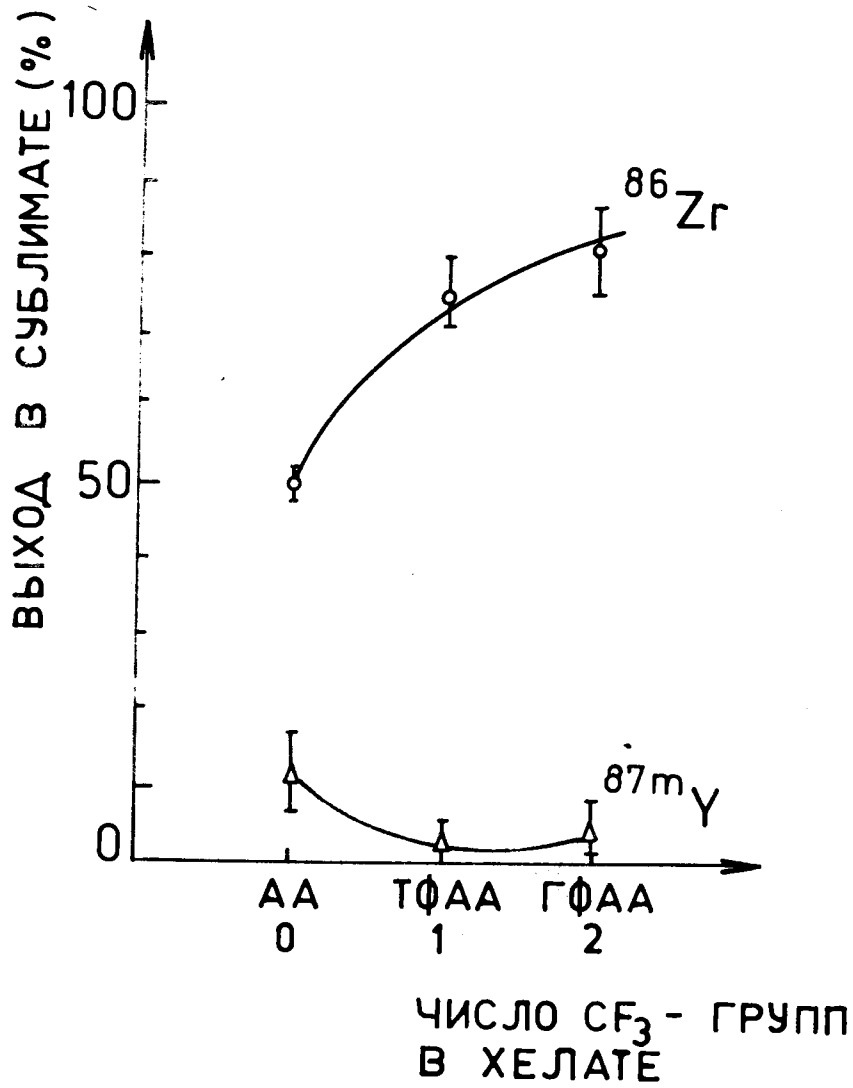


Рис. 1. Выход летучих хелатов радиоактивных атомов ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ при сублимации облученных бета-дикетонатов циркония.

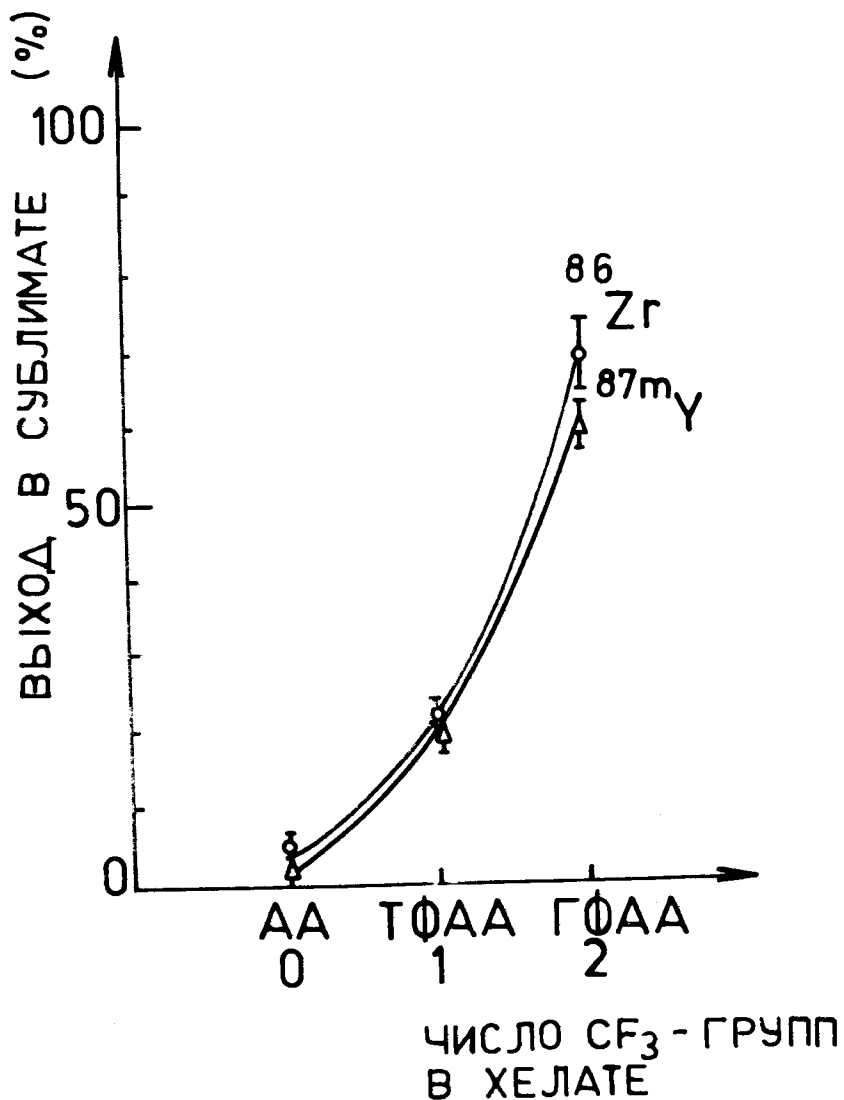


Рис. 2. Выход летучих хелатов радиоактивных атомов ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ при сублимации облученных бета-дикетонатов иттрия.

ствительно мало летуч^{/7/}, а $\text{Zr}/\text{ГФАА}/_4$, как показали наши эксперименты, частично разлагается при сублимации. Следует также отметить, что $\text{Zr}/\text{ТФА-и-БМ}/_4$, $\text{Zr}/\text{ТФА-и-ВМ}/_4$ и $\text{Y}/\text{ГФАА}/_3$ обладают меньшей радиационной устойчивостью по сравнению с другими хелатами.

Из рис. 1 и 2 видно, что образование хелатных молекул ^{86}Zr зависит от степени фторирования исходного хелата: чем большее число CF_3 -групп содержится в бета-дикетонате, тем большая доля атомов ^{86}Zr переходит в сублимат. Выход же хелатных молекул $^{87\text{m}}\text{Y}$ увеличивается для облученных бета-дикетонатов иттрия, а для соединений циркония он меняется мало. Кроме того, следует заметить, что одна и та же валентность центрального атома металла в исходном хелате и образующегося радиоактивного атома облегчает образование меченых хелатных молекул^{/18/}.

Изучение гамма-спектров, полученных для сублиматов от облученных кристаллов бета-дикетонатов Zr , показало, что обнаруженные гамма-линии принадлежат радиоактивным изотопам циркония: 242 кэВ (^{86}Zr), 510 кэВ (анниг. пик), 908 кэВ (^{89}Zr) при условии, что измерения проводились сразу после окончания сублимации. Следует заметить, что кроме ^{86}Zr и ^{89}Zr , другие изотопы циркония не могли быть обнаружены по условиям эксперимента.

Гамма-спектры сублиматов от облученных хелатов иттрия содержат гамма-линии, которые в основном относятся к изотопам $\text{Y}/^{85}\text{Y}$, ^{86}Y , $^{87\text{m}}\text{Y}$ /и $\text{Zr}/^{86}\text{Zr}$ /.

Рассматривая полученные результаты, можно сделать заключение о том, что только бета-дикетонаты циркония, благодаря радиохимической чистоте полученного сублимата, могут быть использованы в препаративном отношении, в частности, для получения меченых хелатов циркония методом вакуумной сублимации.

О возможном механизме образования различных химических форм радиоактивных атомов, возникающих при облучении бета-дикетонатов высокоэнергетическими протонами, довольно подробно говорилось в работе^{/1/}. Результаты, полученные в настоящей работе, показывают

влияние химической среды, в которой протекает стабилизация атомов, возникающих в результате ядерных реакций, и подтверждают тем самым большое значение термальных реакций, определяемых последующей химической обработкой облученного образца. В данном случае показано влияние на реакции радиоактивных атомов Zr и Y различных заместителей, фтор-метильных и метильных групп, входящих в состав молекулы хелата, от которых зависит устойчивость внутрикомплексных соединений металлов, а также влияние ТБФ, введение которого ослабляет или исключает связь металл-иона с молекулами воды в координационной сфере комплексного соединения, что способствует образованию хелатных комплексов.

Выводы

1. Методами жидкостной хроматографии и вакуумной сублимации изучено химическое поведение радиоактивных атомов ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$, образующихся при облучении высокоэнергетическими протонами фторированных бета-дикетонатов циркония и иттрия.

2. Показано, что при разделении химических форм атомов ^{86}Zr и $^{87\text{m}}\text{Y}$ методом хроматографии выход хелатных, с дефицитным числом лигандов и ионных неорганических форм зависит от типа бета-дикетоната различным образом.

3. Введение ТБФ в облучаемый бензольный раствор хелата и в элюент приводит к увеличению выхода хелатных форм атомов ^{86}Zr в облученных хелатах иттрия и атомов $^{87\text{m}}\text{Y}$ при облучении хелатов и циркония и иттрия.

4. При вакуумной сублимации облученных хелатов циркония и иттрия выход атомов ^{86}Zr в форме хелата возрастает с увеличением степени фторирования хелата; выход хелатных молекул $^{87\text{m}}\text{Y}$ увеличивается для облученных хелатов иттрия, а для хелатов циркония он меняется незначительно.

Авторы приносят свою благодарность К.Ронно /Лувенский университет, Бельгия/ за предоставление бета-дикетонов.

Литература

1. Н.Г.Зайцева, Х.М.Исламова, Нгуен Гуинь Май, К.Ронно. Препринт ОИЯИ, Р-7203, Дубна, 1973.
2. N.G.Zaitseva, Kh.M.Islamova, Nguyen Huynh Mai, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 16, 155 (1974).
3. Р.Мошьер, Р.Сиверс. Газовая хроматография хелатов металлов. Мир, М., 1967.
4. Н.Г.Зайцева, Х.М.Исламова. Препринт ОИЯИ, Р12-6355, Дубна, 1972.
5. R.E.Sievers, B.W.Ponder, M.L.Morris, R.W.Moshier. *Inorg. Chem.* 2, 693 (1963).
6. E.M.Larsen, G.Terry, T.Leddy. *J.Amer. Chem. Soc.*, 75, 5107 (1953).
7. E.Berg, J.J.Chiang Acosta. *Anal. Chim. Acta.*, 40, 101 (1968).
8. J.Marsh. *J.Chem.Soc.*, part 2, 1084 (1947).
9. M.L.Morris, R.W.Moshier, R.E.Sievers. *Inorg. Chem.*, 2, 411 (1963).
10. S.C.Chattoraj, C.T.Lynch, K.S.Mazdiyashi, *Inorg. Chem.*, 7, 2501 (1968).
11. W.C.Butts, Ch.V.Banks. *Anal.Chem.*, 42, 133 (1970).
12. J.W.Mitchell, Ch.V.Banks. *Anal. Chim. Acta.*, 57, 415 (1971).
13. J.F.K.Huber, J.C.Kraak. *Anal.Chem.*, 44, 1554 (1972).
14. L.G.Van Uitert, W.C.Fernelius, B.E.Douglas. *J.Amer. Chem.Soc.*, 75, 457 (1953).
15. H.F.Holtzclaw, A.H.Carlson, J.P.Collman, *J.Amer. Chem. Soc.*, 78, 1838 (1956).
16. M.F.Richardson, W.F.Wagner, D.E.Sandes. *J.Inorg. Nucl.Chem.*, 30, 1275 (1968).
17. G.T.Morgan, A.R.Bowen. *J.Chem.Soc.*, 125, 1252 (1924).
18. H.Meinhold, P.Reinhold. *Radiochim. Acta*, 11, 175 (1969).

Рукопись поступила в издательский отдел
15 июля 1974 года.