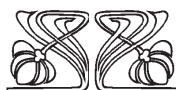
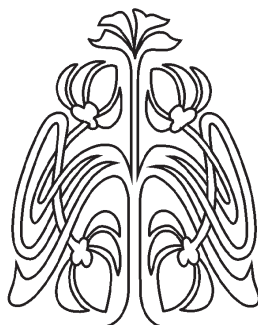
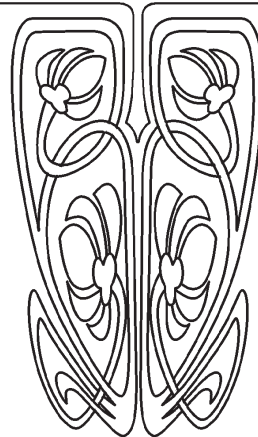




ХИМИЯ



НАУЧНЫЙ
ОТДЕЛ



Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Химия. Биология. Экология. 2021. Т. 21, вып. 4. С. 368–377

Izvestiya of Saratov University. Chemistry. Biology. Ecology, 2021, vol. 21, iss. 4, pp. 368–377

<https://ichbe.sgu.ru>

<https://doi.org/10.18500/1816-9775-2021-21-4-368-377>

Научная статья
УДК 541.28:631.41

Выделение и радиохимическая очистка изотопов самария с использованием ионообменных смол АВ 17×8 и КУ-2

С. Е. Сальменбаев^{1,2}✉, Н. К. Нургайсинова¹, Г. М. Есильканов¹,
А. Е. Темиржанова¹, С. В. Макарычев²

¹Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии РГП НЯЦ РК», Казахстан, 071100, г. Курчатов, ул. Бейбіт Атом, д. 2

²Алтайский государственный аграрный университет, 656049, Россия, г. Барнаул, пр. Красноармейский, д. 98

Сальменбаев Саян Елеусизович, начальник группы исследований высокоактивных образцов лаборатории радиохимических исследований, salmenbayev@nnc.kz, <https://orcid.org/0000-0001-7338-682X>

Нургайсинова Назгуль Кадирбековна, техник группы исследований высокоактивных образцов лаборатории радиохимических исследований, nazgul.nurgaysinova14@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0002-1280-4079>

Есильканов Гани Мухтарович, инженер лаборатории элементного анализа, al-g_007@mail.ru

Темиржанова Арай Ермековна, инженер лаборатории элементного анализа, temirzhanova.aray@mail.ru

Макарычев Сергей Владимирович, доктор биологических наук, профессор кафедры геодезии, физики и инженерных сооружений, makarychev1949@mail.ru

Аннотация. Актуальность данного исследования обусловлена необходимостью разработки методики определения радионуклида ¹⁵¹Sm в почвах радиоактивно загрязненных территорий Казахстана. Разработанная методика позволит провести оценку уровней загрязнения почвенного покрова данным радионуклидом, определить характер его пространственного распределения, оценить вклад в дозовую нагрузку для персонала и населения. Цель: провести выделение изотопов самария из кислотных растворов и радиохимическую очистку с использованием ионообменных смол АВ 17×8 и КУ-2. Объекты: растворы на основе азотной и хлороводородной кислот, содержащие соли химических элементов, имеющих естественные или искусственные β-излучающие изотопы, а также содержащие изотопы Th и U – в качестве родоначальников радиоактивных семейств. Кислотность приготовленных растворов соответствовала кислотности растворов, используемых в лаборатории радиохимических исследований ИРБЭ НЯЦ РК при определении изотопов плутония и америция. Концентрация химических элементов в исследуемых образцах определялась методами атомно-эмиссионной спектрометрии (эмиссионный спектрометр iCAP 6300 Duo с индуктивно связанной плазмой, фирма Thermo Scientific, США) и масс-спектрометрии (квадрупольный масс-спектрометр Agilent 7700x с индуктивно связанной плазмой, фирма Agilent Technologies, США). Представлены результаты экспериментов по выделению и радиохимической очистке изотопов самария из кислотных растворов с использованием ионообменных смол АВ 17×8 и КУ-2. Показано, что на анионите АВ 17×8, в среде 9M HCl, можно удалить такие элементы, как U, Fe, Co, из раствора 7,5M HNO₃ – изотопы Th, однако щелочные и щелочноземель-



ные элементы будут при этом выделяться вместе с изотопами самария. На катионите КУ-2, в свою очередь, можно провести очистку изотопов самария от щелочных элементов, изотопов Тl и U, однако при этом имеется вероятность остаточного загрязнения фракции самария изотопами щелочноземельных элементов, свинца и железа.

Ключевые слова: изотопы, радиоактивные элементы, радиохимическая очистка, ^{151}Sm , ионообменные смолы, аниониты, катиониты

Для цитирования: Сальменбаев С. Е., Нургайсинова Н. К., Есильканов Г. М., Теміржанова А. Е., Макарычев С. В. Выделение и радиохимическая очистка изотопов самария с использованием ионообменных смол АВ 17×8 и КУ-2 // Известия Саратовского университета. Новая серия. Серия: Химия. Биология. Экология. 2021. Т. 21, вып. 4. С. 368–377. <https://doi.org/10.18500/1816-9775-2021-21-4-368-377>

Статья опубликована на условиях лицензии Creative Commons Attribution 4.0 International (CC-BY 4.0)

Article

Isolation and radiochemical purification of samarium isotopes using ion exchange resins AB 17×8 AND KU-2

S. E. Salmenbayev^{1,2} ✉, N. K. Nurgaysinova¹, G. M. Yessilkanov¹, A. E. Temirzhanova¹, S. V. Makarychev²

¹National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan, 2 Beibit Atom St., Kurchatov 071100, Kazakhstan

²Altai State Agrarian University, 98 Krasnoarmeyskiy Ave., Barnaul 656049, Russia

Sayan E. Salmenbayev, salmenbayev@nnc.kz, <https://orcid.org/0000-0001-7338-682X>

Nazgul K. Nurgaysinova, nazgul.nurgaysinova14@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0002-1280-4079>

Gani M. Yessilkanov, al-g_007@mail.ru

Aray E. Temirzhanova, temirzhanova.aray@mail.ru

Sergey V. Makarychev, makarychev1949@mail.ru

Abstract. The relevance of the research is caused by the need to develop a methodological base for determining ^{151}Sm content in the soil cover of radioactively contaminated territories of Kazakhstan. The developed method for the determining of ^{151}Sm will make it possible to assess the levels of soil contamination with this radionuclide, to determine the character of its spatial distribution, to allow estimating the internal exposure doses for the personnel and the population. The aim of the research is to carry out the isolation and radiochemical purification of samarium isotopes from acid solutions via using ion-exchange resins AV 17×8 and KU-2. Objects: salt solutions based on nitric and hydrochloric acid containing the stable isotopes of some natural, artificial β -emitters and isotopes of U and Th. The concentrations of nitric and hydrochloric acids were equal to the concentrations of the same acids used in the routine analysis of Pu and Am. Concentrations of chemical elements were determined using the Agilent 7700x quadrupole mass spectrometer and the iCAP 6300 Duo atomic emission spectrometer. The results of the experiments on the isolation and radiochemical purification of samarium isotopes from acidic solutions using anion-exchange resin AV 17×8 and cation-exchange resin KU-2 have been presented. It has been shown that the Sm-fraction can be purified from alkaline elements, Tl and U isotopes using the KU-2 cation-exchange resin. In turn, the isotopes U, Fe and Co can be removed using an anion exchange resin in 9M HCl media.

Keywords: isotopes, radioactive elements, radiochemical purification, ^{151}Sm , ion exchange resins, anion and cation exchangers

For citation: Salmenbayev S. E., Nurgaysinova N. K., Yessilkanov G. M., Temirzhanova A. E., Makarychev S. V. Isolation and radiochemical purification of samarium isotopes using ion exchange resins AB 17×8 AND KU-2. *Izvestiya of Saratov University. Chemistry. Biology. Ecology*, 2021, vol. 21, iss. 4, pp. 368–377. <https://doi.org/10.18500/1816-9775-2021-21-4-368-377>

This is an open access article distributed under the terms of Creative Commons Attribution 4.0 International License (CC-BY 4.0)

Введение

^{151}Sm представляет собой продукт ядерного деления и нейтронной активации с периодом полураспада порядка 90 лет [1–5]. Наряду со ^{90}Sr и ^{137}Cs входит в тройку наиболее распространенных среднеживущих продуктов деления ядерных материалов. Интерес к ^{151}Sm в основном обусловлен его присутствием в отработанном ядерном топливе и радиоактивных отходах [6–10]. Ввиду большого сечения захвата нейтронов ^{151}Sm пагубно влияет на реакционную способность реактора. К тому же измерение его содержания может охарактеризовать глубину выгорания ядерного топлива. Однако не менее важное значение имеет выявление уровней за-

грязнения природной среды данным радионуклидом, которое могло произойти в результате проведенных испытаний ядерного оружия и радиационных аварий [11].

Полный кумулятивный выход изотопов ^{151}Sm при делении изотопов ^{235}U , ^{239}Pu и ^{238}U составляет 0,46, 1,29 и 0,83% соответственно [12]. Оценочно, только лишь за счет наземных и воздушных ядерных испытаний, проведенных на территории Республики Казахстан, было выделено около $6,1 \cdot 10^5$ Ки активности ^{151}Sm [13]. Подземные испытания ядерного оружия, вероятнее всего, не внесли существенный вклад в загрязнение окружающей среды ^{151}Sm , так как у него отсутствуют газообразные предшественники. Исключение могут составить лишь испытания с



выбросом грунта, либо внештатные ситуации с выходом радиоактивных продуктов на дневную поверхность.

Для определения содержания ^{151}Sm могут использоваться методы жидкостной сцинтилляционной спектрометрии (ЖСС) и масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой. Каждый из указанных методов имеет свои достоинства и недостатки. Так, например, к недостаткам масс-спектрометрических измерений относится, главным образом, мешающее влияние ^{151}Eu , находящегося в природной смеси [4], а также образующегося в результате распада ^{151}Sm .

К недостаткам использования метода ЖСС для измерения активности ^{151}Sm относится то, что максимальная энергия бета-излучения ^{151}Sm не превышает 77 кэВ [14, 15], в то время как для большинства других бета-излучателей, встречающихся в обычной практике радиационного контроля, энергии бета-частиц могут достигать порядка нескольких сотен кэВ. Так, например, для ^{137}Cs максимальная энергия β -частицы составляет 1,167 МэВ, для ^{90}Sr – 544 кэВ, для ^{90}Y – 2,245 МэВ [15]. Поэтому, ввиду непрерывного характера распределения бета-спектров, требуется проведение тщательной радиохимической очистки от всех мешающих бета-излучающих радионуклидов. Также из-за слабой энергии

^{151}Sm необходимо удалить макрокомпоненты, которые могут внести вклад в гашение образца. Одним из методов, применяемых для выделения изотопов в радиохимически чистом виде, является ионный обмен.

Цель данной работы: выделение и радиохимическая очистка изотопов самария из кислотных растворов с использованием ионообменных смол АВ 17×8 и КУ-2.

Материалы и методы

В качестве объектов исследования выступили растворы солей химических элементов в растворах минеральных кислот (табл. 1). В работе использовались мерные колбы объемом 200 мл и реактивы марки «хч».

Изотопы U и Th были выделены из образцов объемных мер активности специального назначения (ОМАЧН), кипячением отобранных навесок в течение 40 мин в растворе 7,5М HNO_3 . Выщелаты отделялись декантированием, остатки песка повторно обрабатывались в течение такого же времени раствором 7,5М HNO_3 . Полученные кислотные выщелаты отфильтровывались через фильтровальную бумагу «синяя лента» в мерные колбы объемом 200 мл и доводились до метки дистиллированной водой, подкисленной несколькими каплями концентрированной азотной кислоты.

Таблица 1 / Table 1

Состав модельных растворов
Composition of the model solutions

Характеристика образцов Specification of the samples	Концентрация элементов, мг/л Concentration of elements, mg/L												
	Fe	Al	Co	Ni	Cs	Sr	Ba	Pb	Sm	Th	U	Bi	Tl
7,5М HNO_3	2,7	3,5	0,87	1,9	2,5	3,9	1,7	5,9	1,7	0,29	0,06	–	–
9М HCl	2,6	4,4	1,7	0,37	3,9	1,7	4,9	4,2	2,5	*	*	–	–
1М HNO_3	1,5	1,1	0,87	–	0,31	0,64	1,3	0,45	2,3	*	*	1,8	0,94

Примечание. * Аликвоты с изотопами Th и U упаривались и растворялись непосредственно в 50 мл солевого раствора; – элементы не определялись;

Note. * Aliquots of thorium and uranium solutions were evaporated and dissolved directly in 50 ml of saline solution; – the elements were not determined.

Для проведения экспериментов использовался анионит АВ 17×8 в нитратной и хлоридной формах, а также катионит КУ-2 в H^+ -форме. Разделение проводилось в стеклянных колонках с диаметром рабочей трубки 10 мм и высотой рабочей части 100 мм.

Суть экспериментов заключалась в следующем: из приготовленных модельных растворов солей отбирались аликвоты объемом 50 мл, которые пропускались через колонки, заполненные анионитом (катионитом) в необходимой

солевой форме, со скоростью 0,4–0,6 мл/мин. Колонки последовательно промывались растворами кислот с той же скоростью. Выходящие из колонок растворы собирались порциями по 20 мл в стеклянные вials.

Содержание элементов в выделенных фракциях определялось с помощью атомно-эмиссионного спектрометра iCAP 6300 Duo (Fe, Al, Ba, Bi) и квадрупольного масс-спектрометра Agilent 7700x (Co, Ni, Cs, Sr, Pb, Sm, Th, U, Tl).



Принцип работы приборов

С помощью индуктивного разряда, продуцируемого высокочастотным генератором в аргоне (являющимся газом-носителем), возникает высокотемпературная плазма. Попадая с помощью распылителя в плазменную горелку, капельки исследуемого раствора высыхают с образованием твёрдых частичек и переходят в газообразное состояние с последующей атомизацией веществ и ионизацией атомов:

ИСП-МС – образовавшиеся положительно заряженные ионы M^{n+} попадают в вакуумную камеру, где разделяются квадрупольным масс-анализатором по массам и детектируются вакуумным электронным множителем;

ИСП-АЭС – образовавшиеся ионы испускают излучения определенной длины волны, формируя эмиссионный спектр, регистрируемый детектором.

Для построения градуировочных графиков использовались многоэлементные стандарт-

ные растворы. Контроль качества измерений осуществлялся путем измерений контрольного раствора через каждые 10 проб. При отклонении градуировочного графика на 10% производилась перекалибровка прибора. Влияние матричных помех устранялось разбавлением исследуемых образцов в 1%-ной HNO_3 (1:100). По результатам определения количества элементов в выходящих фракциях были построены кривые элюирования.

Результаты и их обсуждение

Выделение элементов на анионите АВ 17×8 из среды 7,5М HNO_3 ($n = 3$)

На рис. 1 и 2 показаны зависимости содержания элементов в выделяющихся из колонок фракциях раствора от объема промывного раствора, где на верхней горизонтальной линии указан тип использованного элюента, а вертикальными пунктирными линиями условно выделены границы их применения.

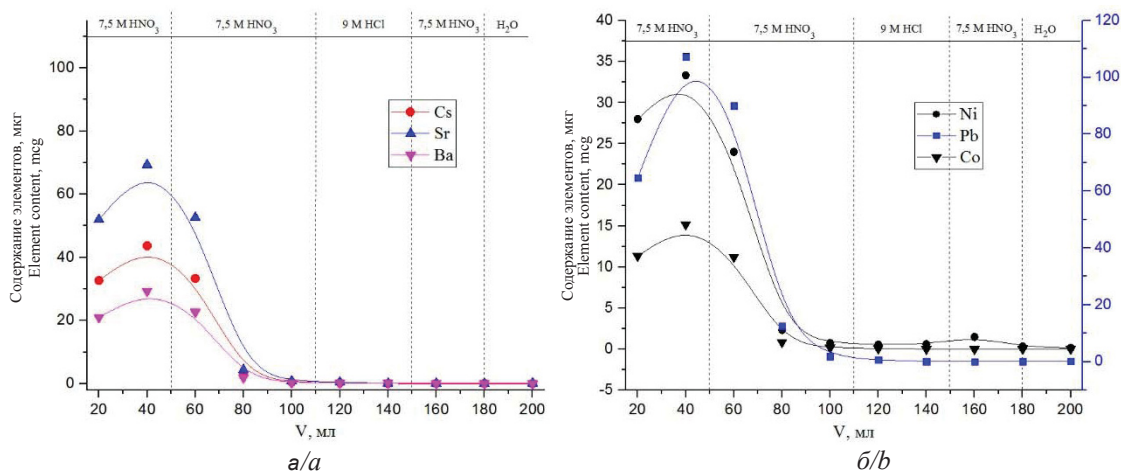


Рис. 1. Кривые элюирования элементов с анионита АВ 17×8, находящегося в нитратной форме: а – Cs, Sr, Ba; б – Ni, Pb, Co

Fig. 1. Elution curves of elements from anion exchanger AV 17×8 in nitrate form: a – Cs, Sr, Ba; b – Ni, Pb, Co

Как видно из рис. 1, изотопы Cs, Sr, Ba сорбционной активности не проявляют и выделяются при пропускании азотнокислого раствора через слой анионита с первыми порциями элюата. Объем элюирующего раствора 7,5М HNO_3 , достаточный для их полного извлечения, составил порядка 80 мл (см. рис. 1, а).

Изотопы Ni, Pb, Co в среде 7,5М HNO_3 также сорбционной способностью не обладают и полностью выделяются из колонок при пропускании порядка 80 мл 7,5М HNO_3 (см. рис. 1, б).

Как можно увидеть из рис. 2, основное количество изотопов Fe и Al выделяется с первыми порциями элюата. При этом для удаления боль-

шей части Fe и Al требуется пропустить более 100 мл 7,5М HNO_3 (см. рис. 2, а).

Выделение изотопов Sm и U происходит с первыми порциями элюата, однако при этом наблюдается некоторое расползание пика U, с максимумом выделения при пропускании 60 мл 7,5М HNO_3 (см. рис. 2, б). Таким образом, есть вероятность того, что несмотря на то что нитратные комплексы U не отличаются высокой устойчивостью, некоторое их количество все же поглощается анионитом. Далее, при смене элюирующего раствора на 9М HCl, выделение изотопов U в элюат полностью прекращается, вследствие его прочной фиксации на смоле (см. рис. 2, б).

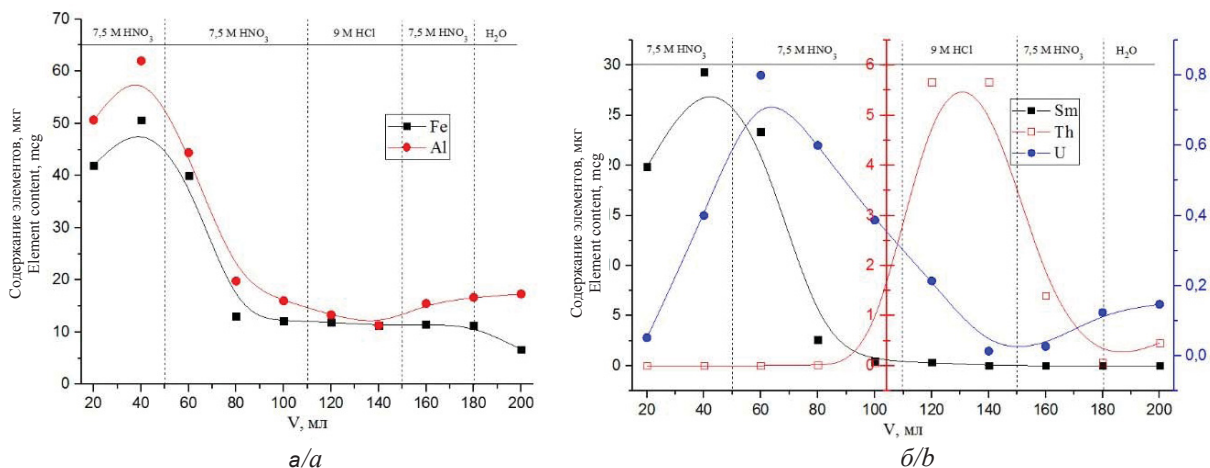


Рис. 2. Кривые элюирования элементов с анионита АВ 17×8, находящегося в нитратной форме: а – Fe и Al; б – Sm, Th и U
Fig. 2. Elution curves of elements from anion exchanger AV 17×8 in nitrate form: a – Fe и Al; b – Sm, Th и U

Что касается Th, то при пропускании через колонки раствора солей в 7,5М HNO₃ он прочно фиксируется на анионообменной смоле и не выделяется вплоть до смены промывного раствора на 9М HCl (см. рис. 2, б), что можно объяснить разрушением его нитратных комплексов и отсутствием какого-либо комплексообразования в солянокислых средах.

Выделение элементов на анионите АВ 17×8 из среды 9М HCl (n = 3)

Выделение элементов с анионита АВ 17×8, находящегося в хлоридной форме, в зависимости от объема элюирующего раствора, показано на рис. 3 и 4.

Как можно увидеть из рис. 3, изотопы Cs, Sr, Ba выходят из колонок не задерживаясь (см. рис. 3, а), что можно объяснить слабыми комплексообразующими свойствами щелочных и

щелочноземельных элементов и отсутствием у них отрицательно заряженных комплексов [16].

Изотопы Ni и Pb, в свою очередь, выделяются практически полностью при пропускании через колонки порядка 100 мл 9М HCl (см. рис. 3, б), что является для них вполне типичным поведением, так как у данных элементов в концентрированных растворах HCl анионные комплексы практически не образуются, а образующиеся комплексы не сорбируются в подобных условиях [17, 18].

Поведение изотопов Co (см. рис. 3, б), в свою очередь, указывает на высокое сродство к аниониту в среде 9М HCl [19]. Так, выделение изотопов Co из колонок начинает происходить только при смене элюирующего раствора на 7,5М HNO₃, где, очевидно, комплексообразование у него отсутствует.

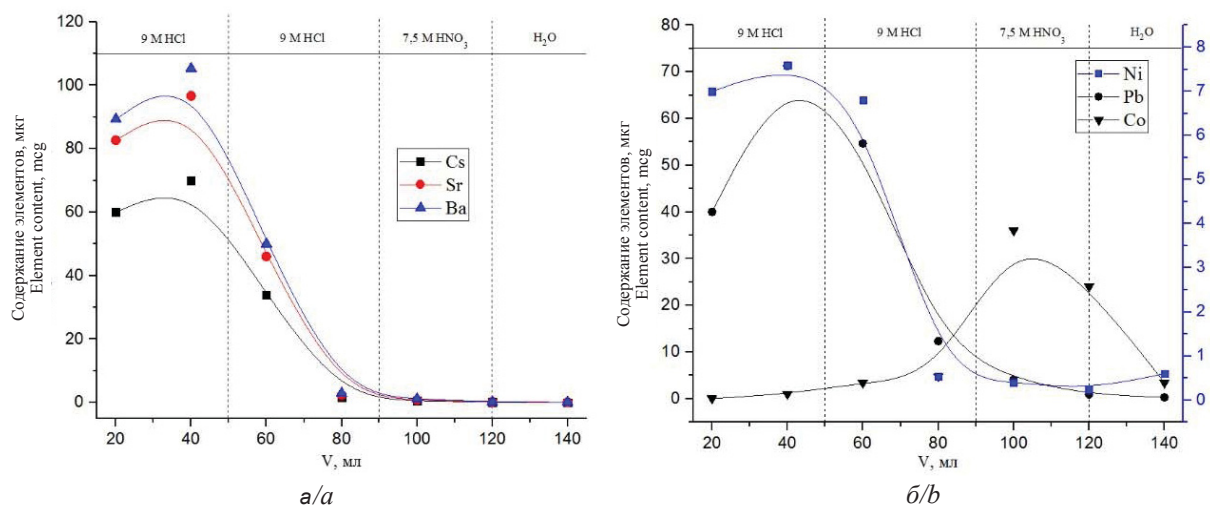


Рис. 3. Кривые элюирования элементов с анионита АВ 17×8, находящегося в хлоридной форме: а – Cs, Sr, Ba; б – Ni, Pb, Co
Fig. 3. Elution curves of elements from anion exchanger AV 17×8 in chloride form: a – Cs, Sr, Ba; b – Ni, Pb, Co



В целом, по склонности к анионному обмену в солянокислых растворах выделяют следующие 3 группы элементов [16]:

- 1) элементы, не сорбирующиеся из растворов HCl любой концентрации, например щелочные и щелочноземельные металлы;
- 2) элементы, сорбционные свойства которых растут с ростом концентрации HCl, к которой относятся такие элементы, как Fe и U;
- 3) элементы, сорбционные свойства которых уменьшаются с ростом концентрации HCl, например, Pb.

Как можно увидеть из рис. 4, изотопы Al, Sm и Th сорбционной способностью в 9М HCl не обладают и практически полностью переходят

в элюат при пропускании порядка 80 мл раствора 9М HCl. Таким образом, судя по их поведению, данные элементы можно также отнести к первой группе элементов.

Изотопы Fe и U относятся ко второй группе элементов и, как можно увидеть из кривых элюирования (см. рис. 4), в среде 9М HCl они прочно зафиксированы на анионообменной смоле. Далее, при смене элюирующего раствора на азотнокислый, сорбционные свойства данных элементов падают и они вымываются из колонок. Так, например, согласно литературным данным, значение коэффициента распределения (K_d) для изотопов урана может уменьшиться практически в 90 раз (с 1800 – в 9М HCl, до 20 – в 7,5М HNO₃) [16].

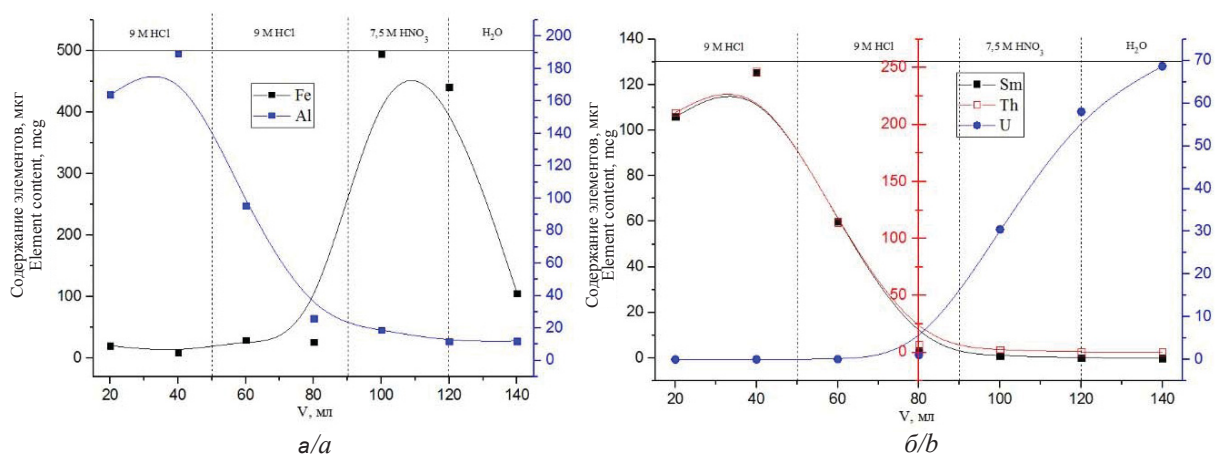


Рис. 4. Кривые элюирования элементов с анионита АВ 17×8, находящегося в хлоридной форме: а – Fe и Al; б – Sm, Th и U
Fig. 4. Elution curves of elements from anion exchanger AV 17×8 in chloride form: a – Fe and Al; b – Sm, Th and U

Выделение элементов на катионите КУ-2 из 1М HNO₃ (n = 3)

На рис. 5 и 6 показаны зависимости содержания элементов в выделяющихся из колонок фракциях раствора от объема промывного раствора.

Как можно судить из полученных графиков элюирования (см. рис. 5, 6), наибольшим сродством к катиониту обладают изотопы тория, наименьшим – щелочные элементы и Tl, что соответствует классическому распределению,

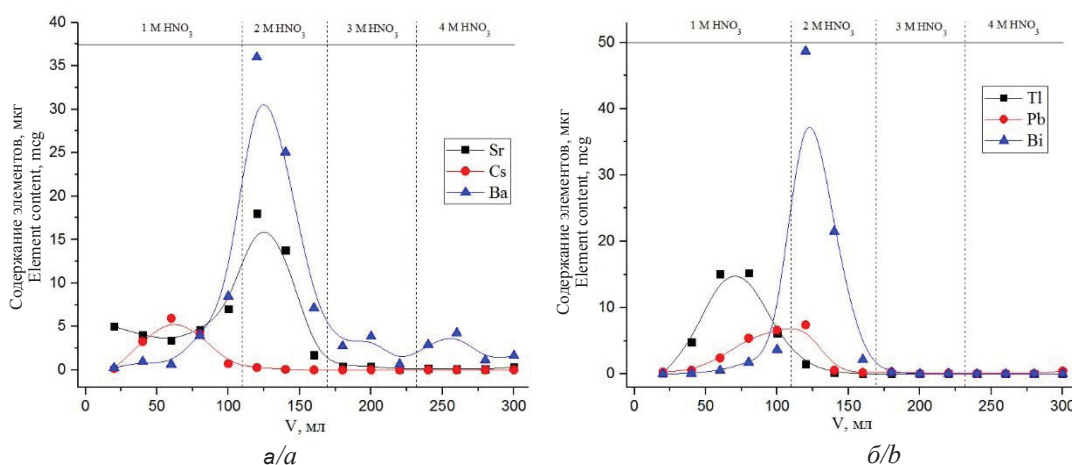


Рис. 5. Кривые элюирования элементов с катионита КУ-2: а – Cs, Sr, Ba; б – Tl, Pb, Bi
Fig. 5. Elution curves of elements from the cation exchanger KU-2: a – Cs, Sr, Ba; b – Tl, Pb, Bi



когда сорбируемость ионов катионитами зависит от величины заряда ядра.

Так, например, изотопы Cs выделяются при пропускании через ионообменные колонки раствора 1 М HNO₃ (см. рис. 5, а), далее, при увеличении концентрации азотной кислоты до 2 моль/л, начинают выделяться щелочно-земельные элементы (Ba, Sr) (а), изотопы Pb и Bi (б).

Как видно из рис. 6, изотопы Al, Fe и Sm выделяются в элюат при пропускании через колонки раствора 2М HNO₃, при этом пик, соответствующий

выделению изотопов самария (см. рис. 6, б), чуть более смещен относительно первых двух в область использования раствора 3М HNO₃. И как можно увидеть, выделение изотопов самария с катионита происходит полностью при промывке смолы раствором азотной кислоты с концентрацией 3 моль/л.

Выделение изотопов U начинает происходить с первыми порциями элюата при прохождении через колонки 1М HNO₃ (см. рис. 6, б) и полностью завершается при промывке катионита раствором 2М HNO₃.

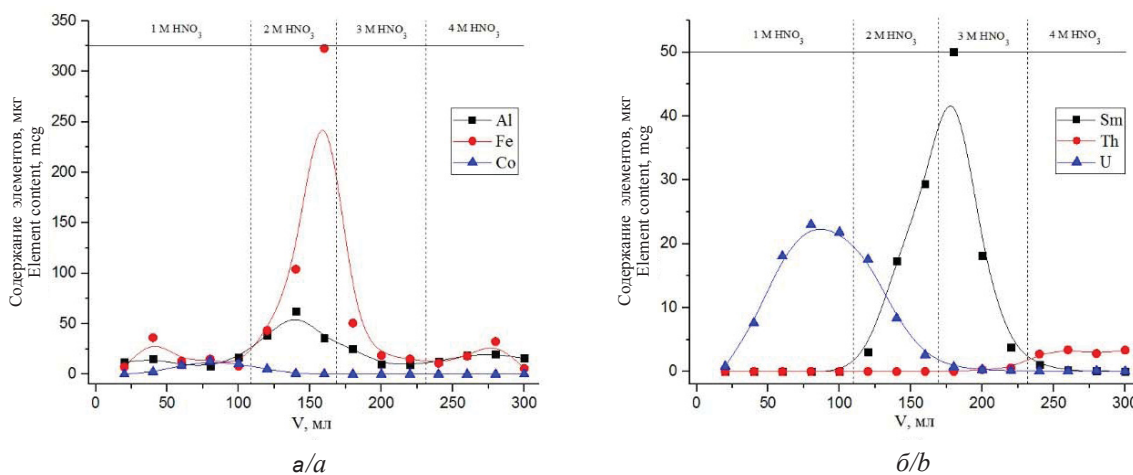


Рис. 6. Кривые элюирования элементов с катионита КУ-2: а – Al, Fe, Co; б – Sm, Th, U
Fig. 6. Elution curves of elements from the cation exchanger KU-2: a – Al, Fe, Co; b – Sm, Th, U

Оценка степени очистки изотопов самария от макро- и микроэлементов

Оценка сорбционной способности элементов проводилась с использованием коэффициентов распределения (K_d). Коэффициент распределения элемента указывает на его сродство к ионообменной смоле, т.е. чем выше K_d – тем выше способность элемента к фиксации на смоле. Для расчета коэффициентов распределения (K_d) использовалось следующее соотношение [20]:

$$K_d = \frac{V - V'}{V''}, \quad (1)$$

где V – объем раствора, соответствующий максимуму пика на выходной кривой; V' – полный свободный объем колонки; V'' – свободный объем столба смолы.

Значения коэффициентов распределения, вычисленные по выражению (1), приводятся в табл. 2.

Таблица 2 / Table 2

Коэффициенты распределения элементов
The distribution coefficients of elements

Тип смолы и ионная форма Resin type and ionic form	Fe	Al	Co	Ni	Cs	Sr	Ba	Pb	Sm	Th	U	Bi	Tl
AB 17×8 (NO ₃ ⁻ -форма) AB 17×8 (NO ₃ ⁻ -form)	7	7	7	7	7	7	7	7	7	24	10	–	–
AB 17×8 (Cl ⁻ -форма) AB 17×8 (Cl ⁻ -form)	20	6	19	7	6	6	6	7	6	6	26	–	–
КУ-2 (H ⁺ -форме) КУ-2 (H ⁺ -form)	28	24	13	–	10	23	23	20	33	48	14	23	12



Качественной характеристикой возможности разделения элементов служит фактор разделения или коэффициент селективности (α). Чем больше фактор разделения элементов, тем лучше их разделение. Для расчета факторов разделения использовалась формула [20]:

$$\alpha = \frac{K_{d_2}}{K_{d_1}}, \quad (2)$$

где K_{d_1}, K_{d_2} – коэффициенты распределения сравниваемых элементов.

Исходя из сравнения коэффициентов распределения элементов можно сделать следующие выводы:

1) единственным из исследуемых элементов, от которого можно полностью избавиться на анионите АВ 17×8 из растворов 7,5М HNO_3 , является Th. Так, значение фактора разделения изотопов тория и самария, вычисленное по выражению (2), составило 3,6; также имеется некоторая очистка от изотопов урана ($\alpha = 1,6$);

2) на анионите АВ 17×8 из 9М HCl можно добиться хорошей очистки от таких элементов, как Fe ($\alpha = 3,5$), Co ($\alpha = 3,4$), U ($\alpha = 4,6$);

3) список элементов, которые можно удалить при элюировании на катионите КУ, несколько шире, чем в предыдущих двух случаях, однако, максимальное значение фактора разделения, полученное при этом, существенно ниже, и составляет 3,2. По уменьшению значений факторов разделения на катионите исследуемые элементы можно выстроить в следующий ряд:

$\text{Cs} > \text{Tl} > \text{Co} > \text{U} > \text{Pb} > (\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Bi}, \text{Th}) > \text{Al} > \text{Fe}$.

Таким образом, наихудшая очистка на катионите будет от высокозарядных ионов железа и алюминия, наилучшая – от цезия. Также имеется вероятность загрязнения фракции самария щелочноземельными элементами и изотопами висмута.

Заключение

Целесообразность и необходимость применения ионообменных смол для радиохимической очистки изотопов самария будут определяться возможностью удаления тех или иных мешающих элементов (радионуклидов). Так, например, на катионите КУ-2 возможно, в некоторой степени, очистить фракцию самария от щелочных, щелочноземельных элементов, изотопов U, Tl, Pb. Пропуская концентрированные растворы HCl через анионит АВ 17×8, находящийся в хлоридной форме, можно удалить такие элементы как U, Co, Fe, однако щелочные и щелочноземельные элементы, будут при этом выделяться вместе с изотопами самария. В целом, очистка на анионитах из солянокислых растворов вы-

глядит более предпочтительной, по сравнению с использованием азотнокислых растворов, так как количество элементов, образующих отрицательно заряженные комплексы в растворах HCl , гораздо больше, чем в HNO_3 .

Исходя из возможного загрязнения фракции самария ионами железа, щелочноземельных элементов и свинца, полагаем, что для достижения оптимальной радиохимической чистоты спектрометрического источника необходимо сочетание метода ионообменного выделения (с последовательным применением анионитов и катионитов), с дополнительной стадией очистки, например, осаждением малорастворимых соединений.

Список литературы

1. *Párkányi D., Szentmiklósi L., Vajda N.* Radiochemical separation of lanthanides and americium by extraction chromatography using DGA resin // Abstract from International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry RANC-2016. Budapest, Hungary, 2016. P. 110–110.
2. *Altitzoglou T., Rožkov A.* Standardisation of the ^{129}I , ^{151}Sm and $^{166\text{m}}\text{Ho}$ activity concentration using the CIEMAT/NIST efficiency tracing method // Journal of Applied Radiation and Isotopes. 2016. Vol. 109. P. 281–285. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.12.048>
3. *Henner P., Hurtevent P., Thiry Y.* Soil-to-plant transfer factors of radioactive Ca, Sm and Pd isotopes: critical assessment of the use of analogies to derive best-estimates from existing non-specific data // Journal of Environmental Radioactivity. 2014. Vol. 136. P. 152–161.
4. *Dewberry R. A., Boyce W. T., Bibler N. E., Ekechukwu A. E., Ferrara D. M.* Separation and purification and beta liquid scintillation analysis of ^{151}Sm in Savannah River Site and Hanford Site DOE high level waste // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2002. Vol. 252, № 3. P. 503–513.
5. *Bé M.-M., Isnard H., Cassette P., Mougeot X., Lourenço V., Altitzoglou T., Pommé S.* Determination of the ^{151}Sm half-life // Radiochimica Acta. 2015. Vol. 103, № 9. P. 619–626. <https://doi.org/10.1515/ract-2015-2393>
6. *Dry E. D., Oldham J. W., Bowen M. S.* Determination of ^{151}Sm and ^{147}Pm using liquid scintillation tracer methods // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2009. Vol. 282. P. 635–640. <https://doi.org/10.1007/s10967-009-0330-1>
7. *Miranda M., Russell B., Ivanov P.* Measurement of ^{151}Sm in nuclear decommissioning samples by ICP-MS/MS // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2018. Vol. 316. P. 831–838. <https://doi.org/10.1007/s10967-018-5764-x>
8. *Buchholz B. A., Biegalski S. R., Whitney S. M., Tumey S. J., Weaver C. J.* Basis for developing samarium AMS for fuel cycle analysis // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 2010. Vol. 268. P. 773–775. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.10.027>



9. Jeskovsky M., Kaizer J., Kontul' I., Lujaniene G., Mullerova M., Povinec P. P. Analysis of environmental radionuclides // Handbook of Radioactivity Analysis / ed. M. Annunziata, 5th ed. New York : Academic Press, 2020. P. 137–261. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814395-7.00003-9>
10. Ojovan M. I., Lee W. E., Kalmykov S. N. An Introduction to Nuclear Waste Immobilisation (Third Edition). Elsevier Ltd, 2019. 512 p. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-102702-8.00011-X>
11. Kashirsky V., Shatrov A., Zvereva I., Lukashenko S. Development of a method for studying $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ activity ratio in the soil of the main Semipalatinsk test site areas // Journal of Environmental Radioactivity. 2020. Vol. 216. P. 106181. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106181>
12. Израэль Ю. А. Радиоактивные выпадения после ядерных взрывов и аварий. СПб. : Прогресс-Погода, 1996. 355 с.
13. Михайлов В. Н., Адушкин В. В., Андрияшин И. А., Волошин Н. П., Дубасов Ю. В., Ильяев Р. И., Спиwak А. А., Чернышев А. К. Ядерные испытания СССР : в 6 т. Саров : Изд-во РФЯЦ – ВНИИЭФ, 1997. Т. 2. 303 с.
14. Vajda N., Molnar Z., Bokori E., Osváth S., Párkányi D., Braun M. Validation of radiochemical methods for the determination of difficult-to-measure nuclides using LSC // Abstract from International Conference on Advances in Liquid scintillation Spectrometry. Copenhagen : Denmark, 2017. P. 50–51.
15. Мартыненко В. П., Никифоров М. В., Павлов А. А. Гамма-излучение продуктов мгновенного деления U^{235} , U^{238} , Pu^{239} . Л. : Гидрометеиздат, 1971. 247 с.
16. Виноградов А. П. Аналитическая химия урана. М. : Изд-во Академии наук СССР, 1962. 432 с.
17. Пешкова В. М., Савостина В. М. Аналитическая химия никеля. М. : Наука, 1966. 204 с.
18. Полянский Н. Г. Аналитическая химия элементов. Свинец. М. : Наука, 1986. 357 с.
19. Пятницкий И. В. Аналитическая химия кобальта. М. : Наука, 1965. 261 с.
20. Рябчиков Д. И., Рябухин В. А. Аналитическая химия редкоземельных элементов и иттрия. М. : Наука, 1966. 380 с.
- assessment of the use of analogies to derive best-estimates from existing non-specific data. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2014, vol. 136, pp. 152–161.
4. Dewberry R. A., Boyce W. T., Bibler N. E., Ekechukwu A. E., Ferrara D. M. Separation and purification and beta liquid scintillation analysis of ^{151}Sm in Savannah River Site and Hanford Site DOE high level waste. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2002, vol. 252, no. 3, pp. 503–513.
5. Bé M.-M., Isnard H., Cassette P., Mougeot X., Lourenço V., Altitzoglou T., Pommé S. Determination of the ^{151}Sm half-life. *Radiochimica Acta*, 2015, vol. 103, no. 9, pp. 619–626. <https://doi.org/10.1515/ract-2015-2393>
6. Dry E. D., Oldham J. W., Bowen M. S. Determination of ^{151}Sm and ^{147}Pm using liquid scintillation tracer methods. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2009, vol. 282, pp. 635–640. <https://doi.org/10.1007/s10967-009-0330-1>
7. Miranda M. G., Russell B., Ivanov P. Measurement of ^{151}Sm in nuclear decommissioning samples by ICP-MS/MS. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2018, vol. 316, pp. 831–838. <https://doi.org/10.1007/s10967-018-5764-x>
8. Buchholz B. A., Biegalski S. R., Whitney S. M., Tumey S. J., Weaver C. J. Basis for developing samarium AMS for fuel cycle analysis. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2010, vol. 268, pp. 773–775. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2009.10.027>
9. Jeskovsky M., Kaizer J., Kontul' I., Lujaniene G., Mullerova M., Povinec P. P. Analysis of environmental radionuclides. In: M. Annunziata, ed. *Handbook of Radioactivity Analysis*. 5th ed. New York, Academic Press, 2020, pp. 137–261. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814395-7.00003-9>
10. Ojovan M. I., Lee W. E., Kalmykov S. N. *An Introduction to Nuclear Waste Immobilisation (Third Edition)*. Elsevier Ltd, 2019. 512 p. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-102702-8.00011-X>
11. Kashirsky V., Shatrov A., Zvereva I., Lukashenko S. Development of a method for studying $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ activity ratio in the soil of the main Semipalatinsk test site areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2020, vol. 216, pp. 106181. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106181>
12. Израэль Ю. А. *Радиоактивные выпадения после ядерных взрывов и аварий* [Radioactive Fallout After Nuclear Explosions and Accidents]. St. Petersburg, Progress-Pogoda Publ., 1996. 355 p. (in Russian).
13. Mikhajlov V. N., Adushkin V. V., Andryushin I. A., Voloshin N. P., Dubasov Yu. V., Il'kaev R. I., Spiwak A. A., Chernyshev A. K. *Yadernye ispytaniya SSSR: v 6 t.* [Nuclear Tests Conducted in the USSR: in 6 vols.]. Sarov, RFYAC – VNIIEF Publ., 1997, vol. 2. 303 p. (in Russian).
14. Vajda N., Molnar Z., Bokori E., Osváth S., Párkányi D., Braun M. Validation of radiochemical methods for the

References

1. Párkányi D., Szentmiklósi L., Vajda N. Radiochemical separation of lanthanides and americium by extraction chromatography using DGA resin. *Abstract from International Conference on Radioanalytical and Nuclear Chemistry RANC-2016*. Budapest, Hungary, 2016, pp. 110–110.
2. Altitzoglou T., Rožkov A. Standardisation of the ^{129}I , ^{151}Sm and $^{166\text{m}}\text{Ho}$ activity concentration using the CIE-MAT/NIST efficiency tracing method. *Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 2016, vol. 109, pp. 281–285. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.12.048>
3. Henner P., Hurtevent P., Thiry Y. Soil-to-plant transfer factors of radioactive Ca, Sm and Pd isotopes: Critical as-



- determination of difficult-to-measure nuclides using LSC. In: *Abstract from International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry*. Copenhagen, Denmark, 2017, pp. 50–51.
15. Martynenko V. P., Nikiforov M. V., Pavlov A. A. *Gamma-izluchenie produktov mgnovennogo deleniya U^{235} , U^{238} , Pu^{239}* [Gamma Radiation from Instant Fission Products of U^{235} , U^{238} , Pu^{239}]. Leningrad, Gidrometeoizdat Publ., 1971. 247 p. (in Russian).
16. Vinogradov A. P. *Analiticheskaya khimiya urana* [Analytical Chemistry of Uranium]. Moscow, Izdvo Akademii nauk USSR, 1962. 432 p. (in Russian).
17. Peshkova V. M., Savostina V. M. *Analiticheskaya khimiya nikelya* [Analytical Chemistry of Nickel]. Moscow, Nauka Publ., 1966. 204 p. (in Russian).
18. Polyanskiy N. G. *Analiticheskaya khimiya elementov. Svinets* [Analytical Chemistry of Elements. Lead]. Moscow, Nauka Publ., 1986. 357 p. (in Russian).
19. Pyatnitskiy I. V. *Analiticheskaya khimiya kobal'ta* [Analytical Chemistry of Cobalt]. Moscow, Nauka Publ., 1965. 261 p. (in Russian).
20. Ryabchikov D. I., Ryabukhin V. A. *Analiticheskaya khimiya redkozemel'nyh elementov i ittriya* [Analytical Chemistry of Rare Earth Elements and Yttrium]. Moscow, Nauka Publ., 1966. 380 p. (in Russian).

Поступила в редакцию 21.05.21, после рецензирования 25.06.21, принята к публикации 28.06.21
Received 21.05.21, revised 21.06.21, accepted 28.06.21