

# ВЫДЕЛЕНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ РЗЭ И ТПЭ ИЗ ОБЛУЧЕННЫХ МИШЕНЕЙ ХРОМАТОГРАФИЧЕСКИМ МЕТОДОМ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ИНТЕРКАЛЯТОРОВ – ИОНОВ ЦВЕТНЫХ МЕТАЛЛОВ

© 2023 г. О. В. Харитонов<sup>а</sup>, Л. А. Фирсова<sup>а, \*</sup>, Е. А. Козлитин<sup>а</sup>

*Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН,  
119071, Москва, Ленинский пр., д. 31, корп. 4  
\*e-mail: Lubovfirsova@mail.ru*

Поступила в редакцию 12.12.2022, после доработки 02.02.2023, принята к публикации 07.02.2023

Предложен хроматографический метод разделения макроконцентраций облученных мишеней и микроконцентраций продуктов облучения мишеней с использованием интеркаляторов – ионов цветных металлов, в качестве которых могут выступать ионы  $Zn^{2+}$  или  $Cd^{2+}$ . Принцип действия интеркаляторов основан на изменении селективности ионного обмена ионов разновалентных элементов при введении в элюенты буферных добавок. Интеркаляторы при определенном составе элюента вклиниваются между зонами макрокомпонента и целевого микрокомпонента, обеспечивая его полное выделение и высокую чистоту. Обобщается и анализируется практическое применение данного метода при выделении  $^{153}Gd$  из облученных европиевых мишеней,  $^{163}Ho$  из облученных мишеней эрбия,  $^{249}Bk$ ,  $^{249}Cf$  из облученных мишеней  $^{244}Cm$ . Разделение и выделение указанных радионуклидов проводили с помощью элюентов на основе этилендиаминтетра- и диэтилентриаминпентаацетата с добавками лимонной кислоты.

**Ключевые слова:** вытеснительная комплексообразовательная хроматография, сульфокатионит, редкоземельные и трансплутониевые элементы, разделение, выделение, интеркалятор, изменение селективности

**DOI:** 10.31857/S0033831123030097, **EDN:** EOBSSS

## ВВЕДЕНИЕ

При облучении мишеней трансплутониевых и редкоземельных элементов (ТПЭ и РЗЭ) дочерние радионуклиды, образующиеся в аналитических количествах, необходимо выделять препаративно с высокой химической и радионуклидной чистотой. Искусственные радионуклиды используются в различных областях медицины, промышленности и науки. Например, они используются при неразрушающем контроле материалов, в приборах технологического контроля, в активационном анализе, радиационной онкологии, радиоиммунотерапии и т.д. [1–4].

Для переработки облученных мишеней ТПЭ и РЗЭ применяются методы цементации, экстракции,

экстракционной, ионообменной элютивной хроматографии и др. [5–9]. При этом приходится решать ряд сложных задач. Наряду с разделением близких по свойствам элементов требуется также очистка их от сопутствующих примесей и реагентов. Поэтому для выделения целевых микрокомпонентов из облученных мишеней обычно используют многостадийные процессы. Все эти методы предназначены, в основном, для переработки мишеней массой от единиц до нескольких сотен миллиграммов.

Метод вытеснительной комплексообразовательной хроматографии (ВКХ) в классическом варианте используется обычно для разделения значительных количеств РЗЭ и ТПЭ от сотен миллиграмм до килограммов [10, 11]. При этом микрокомпонент, ко-

торый не образует на колонке собственной полосы, вымывается на переднем или заднем фронте зоны макрокомпонента. Данный метод ВКХ можно усовершенствовать путем введения в исходную смесь двухвалентного цветного металла-интеркалятора, который при определенном составе элюента занимает промежуточное положение между зонами макрокомпонента и целевого микрокомпонента, обеспечивая его полное выделение и высокую чистоту [12–14]. С использованием данного метода было проведено выделение америция, самария из смеси РЗЭ и ТПЭ, а также разделение таких пар элементов, как Nd–Pr, Am–Eu, Pm–Sm и др.

### ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Принцип действия интеркаляторов основан на изменении селективности ионного обмена ионов разновалентных элементов при изменении условий элюирования [14–17].

Коэффициент разделения интеркалятора – двухвалентного цветного металла (M) – и трехвалентных РЗЭ–ТПЭ (Ln) в ВКХ записывается в следующем виде:

$$\alpha_{Ln-M} = \frac{P_M \cdot K_{Ln-D}}{P_{Ln} \cdot K_{M-D}} \cdot \frac{Q}{\tilde{D}_p}, \quad (1)$$

где  $K_{Ln-D}$ ,  $K_{M-D}$  – константы ионного обмена ионов ТПЭ–РЗЭ и ионов интеркалятора с ионом-вытеснителем;  $Q$  – объемная емкость сорбента, г-экв/л;  $\tilde{D}_p$  – концентрация вытеснителя, моль/л;  $P_{Ln}$ ,  $P_M$  – функции закомплексованности ТПЭ–РЗЭ и интеркалятора соответственно, определяемые следующим образом:

$$P_{Ln} = \frac{[Ln] + [LnA] + [LnHA]}{[Ln]}, \quad (2)$$

$$P_M = \frac{[M] + [MA] + [MHA] + [MH_2A] + 2[M_2A]}{[M]}, \quad (3)$$

где  $[Ln]$ ,  $[M]$  – концентрации свободных ионов  $Ln^{3+}$ ,  $M^{2+}$ , соответственно, моль/л;  $[LnA]$ ,  $[LnHA]$ ,  $[MA]$ ,  $[MHA]$ ,  $[MH_2A]$ ,  $[M_2A]$  – концентрации комплексов, образуемых трех- и двухвалентными ионами в растворе.

Поскольку в ВКХ двухвалентные ионы (M) обычно являются удерживающими для трехва-

лентных (Ln), т.е. трехвалентные ионы обладают большим сродством к смоле  $\alpha_{Ln-M} > 1$ , то для того, чтобы ион M стал интеркалятором, необходимо подобрать такие условия:  $\alpha_{Ln_1-M} < 1$ , а  $\alpha_{Ln_2-M} > 1$ . Из анализа уравнения (1) следует, что основные факторы, определяющие изменение селективности разновалентных элементов, следующие.

1. Увеличение концентрации вытеснителя при разделении разновалентных ионов, приводящее к возрастанию сродства к катиониту иона меньшего заряда и наоборот.

2. Изменение констант ионного обмена, которые зависят от степени сшивки катионита, емкости, набухания и даже от изомерного состава сшивающего агента, а для одного и того же сорбента или элюента от вытеснителя ( $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $NH_4^+$  и др.)

3. Различие в комплексообразовании, зависящее от природы элемента и других факторов, в том числе от температуры процесса.

Кроме того, для ДТПА и ЭДТА ступенчатые константы протонирования двухвалентных цветных металлов на 2–3 порядка превышают аналогичные константы ТПЭ и РЗЭ [18–20].

Следовательно, повышение pH элюатов за счет введения в элюент буферных добавок, таких как, например, цитраты или ацетаты, также приводит к уменьшению коэффициентов разделения и возрастанию сродства к смоле ионов меньшего заряда.

Оптимальными условиями для разделения, т.е. когда интеркалятор занимает промежуточное положение между разделяемыми элементами, будут такие, когда коэффициенты разделения интеркалятора с каждым из разделяемых элементов близки друг к другу, т.е. выполняется соотношение (4):

$$\alpha_{M-Ln_1} = \alpha_{Ln_2-M} = \sqrt{\alpha_{Ln_2-Ln_1}}, \quad (4)$$

где  $\alpha_{M-Ln_1}$  – коэффициент разделения интеркалятора M с микрокомпонентом  $Ln_1$ ;

причем  $\alpha_{M-Ln_1} = 1/\alpha_{Ln_1-M}$  – коэффициент разделения макрокомпонента  $Ln_2$  с интеркалятором M;  $\alpha_{Ln_2-M}$  – коэффициент разделения макрокомпонента  $Ln_2$  и микрокомпонента  $Ln_1$ .

Механизм действия интеркалятора иллюстрируется данными, приведенными на рис. 1. С увеличением количества вводимого интеркалятора в систему от позиции 1 к позиции 6 интеркалятор, находясь

между микро- и макрокомпонентом, раздвигает их зоны все дальше и дальше друг от друга.

Для примера использовались следующие коэффициенты разделения:

$$\begin{aligned}\alpha_{Ln_2-Ln_1} &= 1.7 \\ \alpha_{M-Ln_1} &= 1.3 \\ \alpha_{Ln_2-M} &= 1.308.\end{aligned}$$

Расчет проведен для мишени постоянной массы, т.е. для одного и того же количества микро- и макрокомпонента, занимающего на колонне длину, соответствующую 100 теоретическим тарелкам, и каждая позиция отличается лишь количеством вводимого интеркалятора (1 – количество интеркалятора занимает на колонне длину, соответствующую 10 теоретическим тарелкам, 2 – 20, 3 – 40, 4 – 60, 5 – 80, 6 – 100 теоретическим тарелкам).

Для простоты рассмотрения распределение концентраций используется в безразмерном виде (формулы (5), (6), (8)) и не рассматриваются зоны смешивания микрокомпонента с удерживающим ионом и макрокомпонента с вытеснителем.

Распределение концентраций макрокомпонентов описывается уравнениями Трёмийона [21]:

$$\frac{C_M}{C_{M_0}} = \frac{1}{1 + \alpha_{Ln_2-M}^n}, \quad (5)$$

$$\frac{C_{Ln}}{C_{Ln_0}} = \frac{\alpha_{Ln_2-M}^n}{1 + \alpha_{Ln_2-M}^n}, \quad (6)$$

где  $n$  – номер тарелки, причем отсчет ведется от середины зоны перекрытия.

Если принять за  $N_0$  число теоретических тарелок, соответствующих суммарной длине полосы разделяемых компонентов  $L$ , а за  $n_0$  – номер тарелки, соответствующей головной части, например, первого компонента к концу разделения, то количество компонента к концу разделения будет распределено на  $N_0$  тарелках:

$$x_{Ln_1} = \frac{1}{N_0} \int_{n_0}^{n_0+N_0} \frac{dn}{1 + \alpha_{M-Ln_1}^n}. \quad (7)$$

Решив интеграл Трёмийона (7), можно рассчитать  $n_0$  и пропорцию макрокомпонентов в головной и хвостовой части полосы. Далее можно принять пропорцию в головной части за начальное распре-

деление, т.е.  $n_0 = 0$ . В этом случае номер тарелки будет равен числу тарелок  $n = N$ .

Тогда распределение микрокомпонента запишется в следующем виде:

$$\frac{C}{C_0} = \frac{A}{A_0} = \frac{I}{I_0} = \frac{1}{\alpha_{M-Ln}^n}, \quad (8)$$

и может быть выражено в единицах концентрации ( $C$ ), активности ( $A$ ) или скорости счета на радиометрических приборах ( $I$ ) [22].

При выбранных условиях проведения процесса и оптимальном составе элюента общее количество интеркалятора определяется в зависимости от требований по чистоте, предъявляемых к выделяемому препарату микрокомпонента.

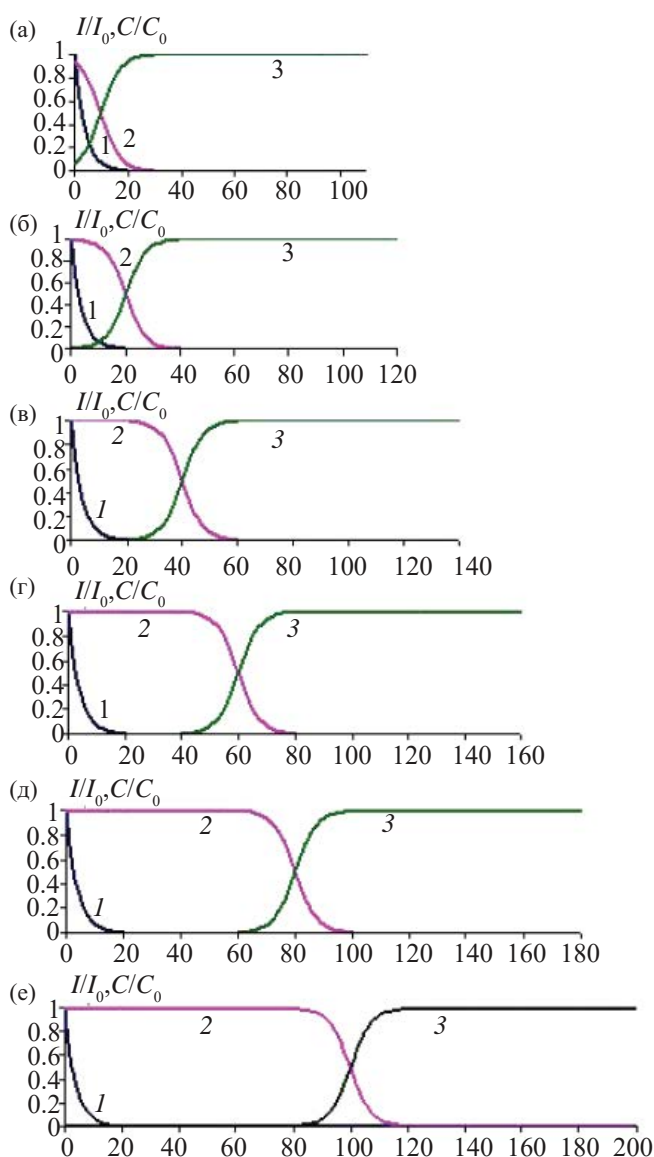
## МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

### *Методика проведения экспериментов*

Смеси элементов разделяли с помощью хроматографической установки, состоящей из одной или нескольких колонн с кожухом и различной последовательно уменьшающейся площадью поперечного сечения, соединенных последовательно, при температуре в диапазоне 70–80°C. Температуру поддерживали жидкостным термоциркулятором.

Колонны загружали слоем набухшего катионита, предварительно переведенного в удерживающую ионную форму с использованием растворов 0.25 моль/л соответствующих нитратов металлов.

Исходную смесь адсорбировали при комнатной температуре на первой колонне путем пропускания раствора, содержащего подлежащие разделению элементы, через слой смолы. Добавку интеркалятора вводили либо в смесь перед сорбцией, либо путем добавления ее в начальные порции элюента, либо использовали часть сорбента в форме интеркалятора. Затем колонку промывали дистиллированной водой и разбавленным раствором удерживающего иона для удаления ионов  $H^+$ . После этого колонну повторно промывали дистиллированной водой, включали термоциркулятор и при заданной температуре начинали элюирование по первой колонне. Подачу элюента осуществляли с помощью перистальтического насоса. Подключение последующих колонн проводили, когда передний фронт



**Рис. 1.** Модель разделения элементов, находящихся в микро- (элемент 1) и макроколичествах (элемент 3) в зависимости от количества вводимого интеркалятора (2), где  $I/I_0$  – отношение скорости счета микрокомпонента к его максимальной скорости счета;  $C/C_0$  – отношение концентрации макрокомпонента к его максимальной концентрации;  $N$  – число тарелок; (а) – количество интеркалятора занимает на колонне длину, соответствующую 10 теоретическим тарелкам, (б) – 20, (в) – 40, (г) – 60, (д) – 80, (е) – 100 теоретическим тарелкам.

разделяемых элементов достигал низа рабочей колонны. При переходе переднего фронта разделяемых элементов на следующую колонну осуществляли изменение объемной скорости элюирования, сохраняя общую скорость потока элюирования на уровне 4 мл/мин с 1 см<sup>2</sup> поперечного сечения ра-

бочей колонны. При этом объемная скорость элюирования (мл/мин), зависящая от сечения колонны, уменьшалась при переходе на колонну меньшего сечения, а линейная скорость движения переднего фронта разделяемых элементов (см/ч) оставалась постоянной по каждой колонне.

Растворы элюентов диэтилтриаминпентауксусной (ДТПА) или этилендиаминтетрауксусной (ЭДТА) кислот нейтрализовали щелочью (NaOH) или аммиаком (NH<sub>4</sub>OH) до значений pH в диапазоне 6.2–7.5. Кроме того, в качестве буферной добавки использовали лимонную кислоту (H<sub>3</sub>Cit).

Образующийся фильтрат после последней колонки собирали по фракциям и анализировали.

В данной работе использовался сульфокатионит КУ-2×8М с размером зерна 115 мкм, для разделения Cf–Bk–Cm использовали катионит КУ-2×8 с зернением 160–250 мкм.

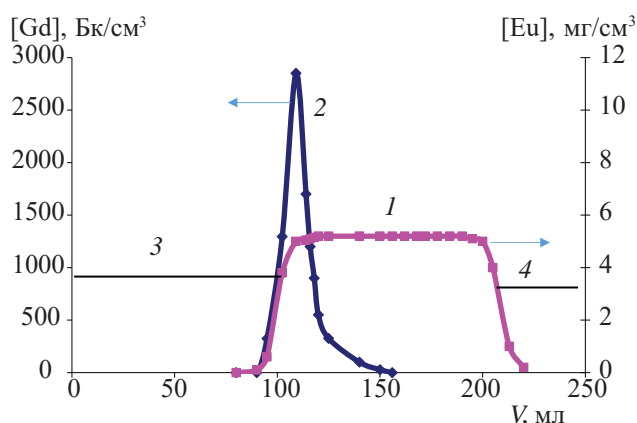
Очистку полученного индикаторного компонента от примесей удерживающего иона, интеркалятора, вытесняющего иона и комплексообразователя проводили путем сорбции фракции индикаторного компонента на небольшой колонне, загруженной слоем сульфокатионита в форме удерживающего иона, с последующей десорбцией примесей цветных и щелочных металлов раствором 1–2 моль/л HNO<sub>3</sub>. После этого фракцию индикаторного компонента десорбировали из колонки в 3–4 моль/л HNO<sub>3</sub>.

#### Методика выполнения анализов

Концентрацию эрбия определяли спектрофотометрическим методом с использованием спектрофотометра UNICO RS 1100 (США).

Значения pH измеряли с помощью pH-метра-иономера «Экотест-120» с точностью ±0.01 единицы pH.

Измерения β- и γ-активности (<sup>249</sup>Bk, <sup>153</sup>Gd, <sup>152,154</sup>Eu, <sup>249</sup>Cf) проводили с помощью многоцелевого спектрометра СКС-50 М. Гамма-канал был оснащен сцинтилляционным детектором CsI, энергетическое разрешение 8 кэВ, эффективность обнаружения 0.08 отсчетов на квант, погрешность измерения не более 10%. Геометрия измерения представляла собой стеклянный стакан диаметром 60 мм и высотой 20 мм (Green Star Technologies, Москва).



**Рис. 2.** Разделение 500 мг европия (1) и микроколичеств  $^{153}\text{Gd}$  (2) методом ВКХ с помощью 0.0514 моль/л (15 г/л) ЭДТА, pH 7.5; 3 – Ni, 4 – Na.

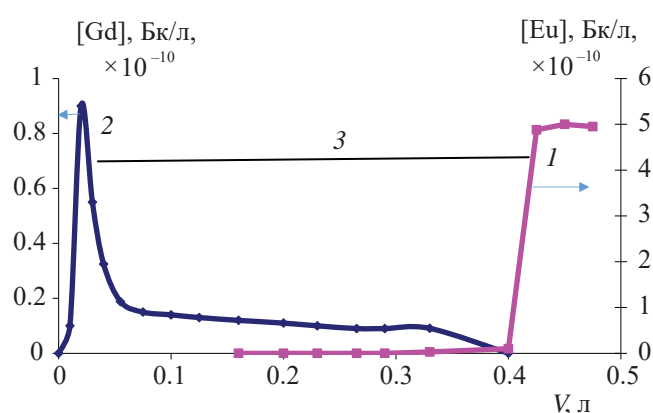
Бета-канал был оснащен сцинтилляционным детектором BDEB-70, диапазон энергий 50–3500 кэВ, энергетическое разрешение 15 кэВ, погрешность измерения не более 10%. Геометрия измерения представляла собой чашку из нержавеющей стали диаметром 50 и высотой 3 мм.

Измерения  $\alpha$ -активности ( $^{244}\text{Cm}$ ) проводили с помощью жидкостного сцинтилляционного спектрометра SKS-07P\_B11 (Green Star Instruments, Москва), оснащенного детектором UBDT-003 № 05/095, диапазон энергий  $4.5 \times 10^3$ – $7.6 \times 10^3$  кэВ для альфа-канала, 50– $3.5 \times 10^3$  кэВ для бета-канала, геометрия измерения – пластиковый флакон диаметром 26 и высотой 60 мм, сцинтилляционный коктейль Optiphasе Hisafe.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

### *Выделение $^{153}\text{Gd}$ из облученных европиевых мишеней*

Разделение гадолиния и европия проводили на хроматографической установке, изготовленной из нержавеющей стали и состоящей из шести колонн: первая колонна высотой 20 см и сечением 1 см<sup>2</sup>, пять последующих колонн высотой 1 м и сечением 1.0, 0.5, 0.28, 0.13 и 0.07 см<sup>2</sup>. Использовали сульфокатионит в никелевой форме, температура 80°C. Скорость движения полосы РЗЭ по колонке составляла 10–20 см/ч.



**Рис. 3.** Разделение  $^{152,154}\text{Eu}$  (1) и микроколичеств  $^{153}\text{Gd}$  (2) в присутствии интеркалятора Cd (3), элюент 0.0514 моль/л (15 г/л) ЭДТА + 0.0152 моль/л (3.2 г/л)  $\text{H}_3\text{Cit}$ , pH 7.4.

Первую колонну переводили в форму интеркалятора – кадмия. Сорбцию гадолиния и европия проводили из азотнокислых растворов на второй колонне.

В работе использовали элюент, содержащий 15 г/л (0.0514 моль/л) ЭДТА и 3.2 г/л (0.0152 моль/л) цитрата натрия, pH 7.4.

На рис. 2 показана выходная кривая, полученная в результате разделения искусственной смеси, содержащей 500 мг европия, меченного  $^{152}\text{Eu}$ , и микроколичеств  $^{153}\text{Gd}$ , классическим методом ВКХ без использования интеркалятора. В данном случае гадолиний вымывается на передней границе зоны европия и не происходит разделения гадолиния и европия.

Рис. 3 иллюстрирует выделение  $^{153}\text{Gd}$  из облученной мишени, содержащей 19 мг природного европия. При облучении природного европия, кроме  $^{153}\text{Gd}$ , в мишени образуются радионуклиды европия-152, -154, -155, -156. Для разделения этой смеси использовали модифицированную методику ВКХ с выбранным составом элюента и в присутствии интеркалятора  $\text{Cd}^{2+}$ . Гадолиний был почти полностью отделен от зоны европия зоной, занятой кадмием.

Для последующей сорбционной очистки РЗЭ от кадмия, никеля и натрия подкисленные до 0.1–0.3 моль/л по азотной кислоте фракции РЗЭ пропускали через первую колонну, содержащую катионит в никелевой форме. Ионы кадмия, никеля и натрия десорбировали раствором 2 моль/л  $\text{HNO}_3$  при тем-



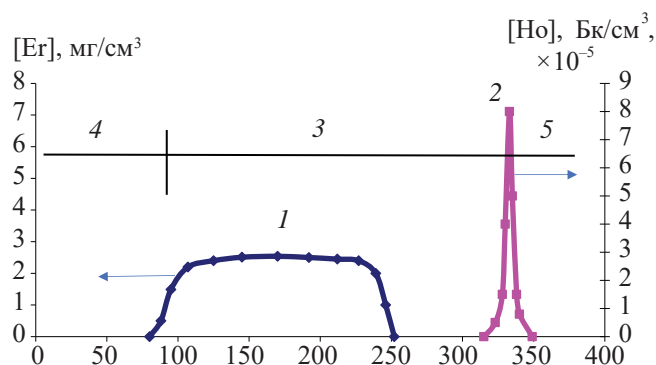


Рис. 4. Разделение Er (1) и микроколичеств  $^{163}\text{Ho}$  (2) в присутствии интеркалятора Zn (3), элюент 0.04 моль/л ЭДТА + 0.0052 моль/л  $\text{H}_3\text{Cit}$ , pH 6.2; 4 – Cu, 5 –  $\text{NH}_4^+$ .

пературе  $80^\circ\text{C}$  в 7–10 колоночных объемах (к.о.). РЗЭ вымывали в 3–5 к.о. раствором 3 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Был получен гадолиний, содержащий менее 0.2 мг европия.

#### Выделение $^{163}\text{Ho}$ из облученной эрбиевой мишени

Разделение проводили на установке, состоящей из четырех стеклянных колонн: первой сорбционной колонны высотой 40 см и сечением  $1\text{ см}^2$  и трех разделительных колонн высотой 80 см и сечением 0.8, 0.5 и  $0.25\text{ см}^2$ . В качестве элюента использовали раствор, содержащий 0.04 моль/л ЭДТА и 0.0052 моль/л цитрата натрия, pH 6.8. В качестве интеркалятора использовали цинк, который вводили в систему вместе с исходным сорбционным раствором. Разделение проводили на сульфокатионите в медной форме при температуре  $80^\circ\text{C}$ .

Результаты разделения приведены на рис. 4. Микроколичества гольмия полностью отделились от макромишени эрбия зоной цинка.

Очистку фракций РЗЭ от интеркалятора и удерживающего иона проводили на сорбционной колонне. Фракции РЗЭ пропускали через колонну, содержащую катионит в медной форме, затем раствором 2 моль/л  $\text{HNO}_3$  при температуре  $80^\circ\text{C}$  ионы цинка, меди и натрия десорбировались в 7–10 к.о., РЗЭ вымывались в 3–5 к.о. раствором 3 моль/л  $\text{HNO}_3$ . В результате очистки была получена фракция гольмия, содержащая менее 0.1 мг эрбия.

#### Разделение смеси $^{249}\text{Cf}$ , $^{249}\text{Bk}$ и $^{244}\text{Cm}$

Смесь изотопов  $^{249}\text{Cf}$  (15.2 мкг),  $^{249}\text{Bk}$  (8.8 мкг) и  $^{244}\text{Cm}$  (2.1 мг), используемая для разделения, была получена в результате облучения мишени кюрия в реакторе. Для разделения была использована колонка высотой 60 см и сечением  $0.2\text{ см}^2$ , заполненная катионитом КУ-2  $\times$  8 зернением 160–250 мкм в никелевой форме. Интеркалятор – цинк. Температура процесса  $70^\circ\text{C}$ . Для разделения данной смеси использовали три элюента, состав и назначение которых представлен в табл. 1.

Результаты разделения представлены на рис. 5. Были получены: (1) фракция  $^{249}\text{Cf}$  (15.15 мкг) с коэффициентом очистки от берклия 100, кюрия во фракции обнаружено не было; (2) фракция  $^{249}\text{Bk}$  (6.7 мкг) с коэффициентом очистки по кюрию  $10^5$ – $10^6$  и коэффициентом очистки по калифорнию  $2 \times 10^3$ ; (3) фракция  $^{244}\text{Cm}$  (2.1 мг), в которой не было обнаружено калифорния.

Как видно из представленного рисунка, калифорний, берклий и кюрий вымылись отдельными зонами и не имеют зон смешивания друг с другом, о чём свидетельствуют полученные величины коэффициентов очистки. Имеются зоны смешивания с цинком. Но цинк легко отделяется от ТПЭ упомянутым выше способом.

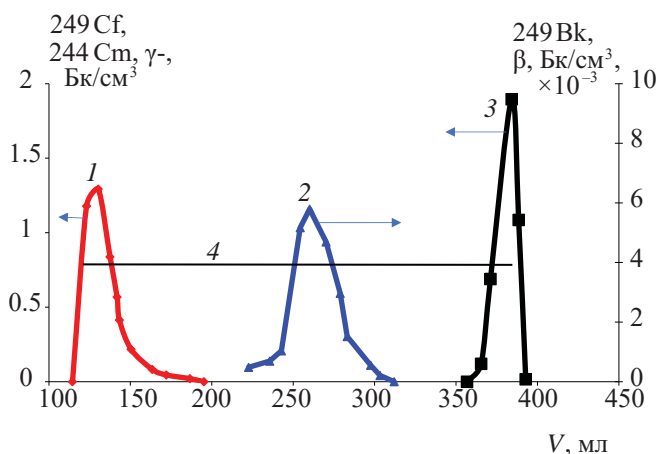


Рис. 5. Разделение  $^{249}\text{Cf}$  (1),  $^{249}\text{Bk}$  (2) и  $^{244}\text{Cm}$  (3) на одной колонке при температуре  $70^\circ\text{C}$  с помощью различных элюентов: вначале 0.0254 моль/л ДТПА + 0.25 моль/л  $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ , pH 2.3; затем 0.0254 моль/л (10 г/л) ДТПА, pH 6.9; затем 0.0254 моль/л (10 г/л) ДТПА + 0.01 моль/л (2 г/л) лимонной кислоты, pH 7.0; ион-интеркалятор –  $\text{Zn}^{2+}$  (4).

**Табл. 1.** Элюенты, используемые для разделения калифорния, берклия, кюрия

№	Состав элюента	Назначение элюента
1	0.0254 моль/л ДТПА + 0.25 моль/л Zn(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> , pH 2.3	Введение интеркалятора в систему
2	0.0254 моль/л ДТПА, pH 6.9	Вымывание калифорния
3	0.0254 моль/л ДТПА + 0.01 моль/л Cit, pH 7	Разделение берклия и кюрия

В данной работе было опробовано 3 способа введения интеркалятора в хроматографическую систему: добавление в исходную смесь или в состав элюента, а также использование сорбента в форме иона-интеркалятора. В случае небольших коэффициентов разделения  $\alpha_{Ln2-Ln1} < 1.5$  предпочтительнее вводить интеркалятор в систему с помощью использования сорбента в форме иона-интеркалятора. Если для разделяемых элементов  $\alpha_{Ln2-Ln1} > 1.5$ , то возможно добавление иона-интеркалятора в сорбируемую смесь или в первые порции элюента. Кроме того, добавление интеркалятора в состав элюента целесообразно при использовании нескольких элюентов для разделения многокомпонентных смесей.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, классический метод вытеснительной комплексообразовательной хроматографии, применяемый обычно для разделения макроколичеств элементов, использованный в условиях введения в систему интеркалятора, позволяет выделять микроколичества ТПЭ и РЗЭ из облученных мишеней. Условия, при которых интеркалятор занимает требуемое положение, подбираются предложенным расчетным методом. При этом устраняется основной недостаток вытеснительной хроматографии – наличие зон перекрывания разделяемых элементов. Это особенно важно при необходимости получить высокий выход особо чистого препарата, находящегося в микроконцентрациях по отношению к макроколичествам материала облученной мишени.

С применением данного метода было проведено выделение микроколичеств <sup>153</sup>Gd из облученной европиевой мишени с использованием сорбента в форме интеркалятора – кадмия – с помощью элюента, содержащего 15 г/л (0.0514 моль/л) ЭДТА и 3.2 г/л (0.0152 моль/л) цитрата натрия, pH 7.4.

Выделение <sup>163</sup>No из облученной эрбиевой мишени было проведено при введении интеркалятора – цинка – в исходную смесь. Был использован элюент 11.7 г/л (0.04 моль/л) ЭДТА и 1.1 г/л (0.0052 моль/л) цитрата натрия, pH 6.8.

При использовании в качестве интеркалятора цинка, вводимого в систему с первыми порциями элюента, на одной колонке осуществлено одностадийное разделение тройной смеси <sup>249</sup>Cf, <sup>249</sup>Bk и <sup>244</sup>Cm с использованием градиентного элюирования элюентом на основе ДТПА.

На основании предложенного математического аппарата в принципе можно найти условия и разделить с использованием хроматографического метода с разделяющим ионом любую пару РЗЭ или ТПЭ.

### КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements / Eds L.R. Morss, N. Edelstein, J. Fuger, J.J. Katz. Switzerland: Springer Nature, 2011. 4th ed. Vol. 2.
2. Suli L.M., Ibrahim W.H.W., Aziz B.A., Deraman M.R., Ismail N.A. // Chem. Eng. Res. Bull. 2017. Vol. 19. P. 20.
3. Eliseev S., Blaum K., Block M., Chenmarev S., Dorrer H., Düllmann Ch.E., Enss C., Filianin P.E., Gastaldo L., Goncharov M., Köster U., Lautenschläger F., Novikov Yu.N., Rischka A., Schüssler R.X., Schweikhard L., Türler A. // Phys. Rev. Lett. 2015. Vol. 115. 062501.
4. Beylergil V., Carrasquillo J.A., Weber W.A., Larson S.M. // Ther. Nucl. Med. 2013. P. 3.
5. Тарасов В.А., Топоров Ю.Г., Лебедев В.М., Корнилов А.С., Ревякин Ю.Л. Получение препарата гадолиния-153 с высокой удельной активностью // Тр. АО ГНЦ НИИАР. 2018. Т. 2. С. 41.

6. *Horwitz E.P., McAlister D.R., Bond A.H., Barrans R.E., Williamson J.M.* // *Appl. Radiat. Isot.* 2005. Vol. 63. P. 23.
7. *Kuznetsov R.A., Bobrovskaya K.S., Svetukhin V.V., Fomin A.N., Zhukov A.V.* // *Radiochemistry.* 2019. Vol. 61. P.381.
8. *Hashimoto K., Matsuoka H., Uchida S.* // *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 2003. Vol. 255. P. 575.
9. *Suzuki T., Fujii Y., Ozawa M.* Patent US 007214318 B2. 2007.
10. *Kharitonov O.V., Firsova L.A., Milyutin V.V., Kozlitin E.A.* // *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 2019. Vol. 321, N 2. P. 511.
11. *Kharitonov O.V., Firsova L.A., Kozlitin E.A.* // *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 2020. Vol. 326, N 1. P. 627.
12. *Chuveleva E.A., Kharitonov O.V., Firsova L.A.* // *Radiochemistry.* 1996. Vol. 38, N 5. P. 410.
13. *Kharitonov O.V., Chuveleva E.A., Firsova L.A.* // *Radiochemistry.* 1998. Vol. 40, N 2. P. 133.
14. *Харитонов О.В., Фирсова Л.А., Козлитин Е.А., Милютин В.В., Кудрявцева С.П., Некрасова Н.А., Конonenko О.А.* // Сорбционные и хроматографические процессы. 2016. Т. 16, № 3. С.291.
15. *Tret'yakova S.G., Vidanov V.L., Tkachenko V.A., Shmidt O.V., Kharitonov O.V., Kozlitin E.A., Firsova L.A.* // *Radiochemistry.* 2018. Vol. 60, N 3. P. 263.
16. *Kharitonov O.V., Firsova L.A., Kozlitin E.A.* // *Russ. J. Phys. Chem. A.* 2019. Vol. 93, N 3. P. 561.
17. *Kharitonov O.V., Firsova L.A., Kozlitin E.A.* // *Russ. J. Phys. Chem. A.* 2019. Vol. 93, N 4. P. 758.
18. *Martell A.E., Smith R.M.* Critical Stability Constants. Vol. 1: Amino Acids. New York: Plenum, 1974.
19. *Martell A.E., Smith R.M.* Critical Stability Constants. Vol. 5: First Supplement. New York: Plenum, 1982.
20. *Martell A.E., Smith R.M.* Critical Stability Constants. Vol. 6: Second Supplement. New York: Plenum, 1989.
21. *Tremillon B.* Les separations par les resines echangeuses d'ions. Paris, 1965.
22. *Kharitonov O.V., Firsova L.A., Gelis V.M.* // *Radiochemistry.* 2010. Vol. 52, N 5. P. 512.