

УДК 543.54 : 546.798.23 : 543.612

## ОТДЕЛЕНИЕ МАКРОКОЛИЧЕСТВ АМЕРИЦИЯ СОРБЕНТОМ, ИМПРЕГНИРОВАННЫМ ТЕТРАОКТИЛДИГЛИКОЛЬАМИДОМ, С ЦЕЛЮ ПОСЛЕДУЮЩЕГО СПЕКТРАЛЬНОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ ПРИМЕСЕЙ В ДИОКСИДЕ АМЕРИЦИЯ

**Е.В. Чухланцева<sup>1</sup>, Н.Л. Сергеева<sup>1</sup>, А.Н. Усолкин<sup>1</sup>, Л.К. Неудачина<sup>2</sup>,  
В.Е. Баулин<sup>3, 4</sup>, А.Ю. Цивадзе<sup>4</sup>**

<sup>1</sup> ФГУП «ПО Маяк»

456780, Челябинская обл., г. Озерск, ул. Ленина, 31

<sup>2</sup> Уральский федеральный университет

имени первого Президента России Б.Н. Ельцина

620083, г. Екатеринбург, пр. Ленина, 51

[Ludmila.Neudachina@usu.ru](mailto:Ludmila.Neudachina@usu.ru)

<sup>3</sup> Учреждение Российской академии наук Институт физической химии

и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН

119991, г. Москва, Ленинский проспект, 31-4

<sup>4</sup> Учреждение Российской академии наук

Институт физиологически активных веществ РАН

142432, г. Черноголовка, Северный проезд, 1

Поступила в редакцию 14 марта 2012 г.

Для отделения макроколичеств америция от ряда примесей использованы сорбенты, импрегнированные тетраоктилдигликольамидом. Изучено влияние азотной и соляной кислот на сорбцию нептуния (IV), урана (VI), америция (III), европия (III), церия (III), тория (IV) и железа (III). Установлены оптимальные условия разделения микроколичеств церия (III), натрия, калия, никеля, цинка, алюминия, хрома (III), кремния, титана (III), железа (III), а также макроколичеств европия (III) и америция. На основании полученных результатов разработана методика экстракционно-хроматографического отделения макроколичеств америция для последующего спектрографического определения примесей в диоксиде америция-241. Разработанная методика опробована на реальных пробах. Результаты апробации показали возможность применения данного способа выделения примесей в методиках их спектрального определения в диоксиде америция-241.

**Ключевые слова:** экстракционная хроматография, тетраоктилдигликольамид, носитель, примесь, церий, диоксид америция

**Чухланцева Екатерина Владимировна** – руководитель группы физико-химических методов анализа ЦЗЛ ФГУП «ПО «Маяк».

**Область научных интересов:** хроматографические методы анализа актиноидов и лантаноидов, физико-химические методы анализа материалов на основе актиноидов и объектов окружающей среды.

Автор 12 публикаций.

**Сергеева Нина Леонидовна** – инженер спектрального анализа радиохимического завода ФГУП «ПО «Маяк».

**Область научных интересов:** атомно-эмиссионный и атомно-абсорбционный методы анализа материалов на основе актиноидов.

**Усолкин Анатолий Николаевич** – к.х.н., ведущий инженер-радиохимик СКБ АП ФГУП «ПО «Маяк».

**Область научных интересов:** хроматографические методы анализа актиноидов и лантаноидов, физико-химические методы анализа трансурановых элементов.

Автор более 10 публикаций.

**Неудачина Людмила Константиновна** – к.х.н., профессор, зав. кафедрой аналитической химии ИЕН УрФУ им. Б.Н. Ельцина.

**Область научных интересов:** свойства и аналитическое применение координационных соединений; физико-химические свойства хелатных сорбентов на органи-

ческой и неорганической матрицах и их применение для разделения и концентрирования ионов металлов.

Автор более 100 публикаций.

Баулин Владимир Евгеньевич – к.х.н., главный научный сотрудник лаборатории новых физико-химических проблем Института физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН, ведущий научный сотрудник, руководитель группы химии комплексообразователей Института физиологически активных веществ РАН.

Область научных интересов: органическая химия, химический дизайн комплексообразующих соединений с заданными свойствами, экстракция, экстракционно-хроматографические материалы.

Автор более 150 публикаций.

Цивадзе Аслан Юсупович – д.х.н., академик Российской академии наук.

Область научных интересов: комплексообразование щелочных, переходных и радиоактивных элементов с краун-лигандами, разделение элементов и их изотопов с помощью макроциклических полиэфиров, дизайн супрамолекулярных структур на основе полиэфирных соединений.

Автор более 700 публикаций.

## ВВЕДЕНИЕ

Переработка отработанного ядерного топлива (ОЯТ) является одной из наиболее актуальных задач современной энергетики. В ходе технологического процесса переработки ОЯТ получают большое количество различных продуктов. Одним из них является диоксид америция, который используется для изготовления источников  $\alpha$ - и  $\gamma$ -излучения, применяемых в различных приборах, таких как дефектоскопы, плотномеры, толщиномеры, детекторы дыма и т.п.

Для изготовления изотопных источников излучения большое значение имеет содержание в исходном материале примесей. Массовая доля примесей, не превышающая значение, приведенное в соответствующих утвержденных нормативах, является одним из показателей качества диоксида америция.

В настоящее время для определения концентрации ряда примесей в аналитической лаборатории ПО «Маяк» применяют метод атомно-эмиссионной спектроскопии без предварительного отделения америция. Однако америций, присутствующий в анализируемой пробе в достаточно больших количествах ( $\sim(4 \pm 1)$  мг), оказывает частичное мешающее влияние на измерение относительной интенсивности аналитически важных линий примесей, что может приводить к менее точным результатам анализа. Кроме того, высокая  $\alpha$ - и  $\gamma$ -активность растворов америция вызывает увеличение дозовой нагрузки на персонал, осуществляющий измерение содержания примесей в америциевых растворах. Поэтому для повышения качества получаемых результатов и снижения дозовой нагрузки целесообразно применять предварительное отделение макрокомпонента от нормируемых примесей.

Экстракционные методы разделения отличаются исключительно простой техникой исполне-

ния. Тем не менее, их применение при анализе препаратов радионуклидов также нежелательно из-за высокой дозовой нагрузки на персонал. С этой точки зрения более предпочтительны хроматографические методы разделения.

Данная работа посвящена изучению возможности применения подходящего сорбента, позволяющего разделить америций и 11 примесей с целью последующего спектрографического определения последних.

## ВЫБОР ОБЪЕКТОВ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для удобства проведения стадии подготовки проб и получения качественных результатов необходимо соблюдение следующих условий:

- простота выполнения процесса разделения;
- высокая сорбционная емкость используемого сорбента по отношению к америцию;
- продолжительность проведения разделения - не более 1 ч;
- объем очищенного от америция раствора - не более 15 см<sup>3</sup>;
- количественное выделение примесных элементов в выбранных условиях разделения;
- минимальное содержание примесей, мешающих спектральному анализу, в используемом элюенте, очищенном от америция.

Из хроматографических методов наиболее перспективным нами признан вариант экстракционной хроматографии. В качестве сорбентов в экстракционной хроматографии применяют материалы, представляющие собой гидрофобный носитель, импрегнированный неподвижной фазой. В качестве неподвижной фазы используются жидкие комплексообразователи, которые гомогенно распределяются в твердофазном носителе. Эффективность импрегнированных сорбентов зависит от природы твердофазной матрицы, селективного экстрагента и условий их применения.

В последние годы в связи с интенсивным развитием координационной химии все большее распространение находят новые классы соединений, обладающие более высокой эффективностью извлечения, химической и радиационной стойкостью по сравнению с широко известными соединениями (например, фосфорорганические соединения, карбамоилфосфиноксиды и т.п.). Одним из перспективных классов соединений нами признаны тетраалкилдигликольамиды, поскольку коэффициенты извлечения америция при их использовании в кислых средах имеют максимальные значения [1-6].

Наибольший интерес при исследовании америциевых растворов представляет соединение N,N,N',N'-тетра-*n*-октилдигликольамид (ТОДГА, компонент известного сорбента «DGA Normal» фирмы «Eichrom Technologies, Inc.»). В ряде статей [1-6] приведены зависимости коэффициентов распределения элементов при использовании ТОДГА от состава водной фазы, но не описано его практическое применение для отделения макрокомпонента америция от микропримесей. Поэтому целью данной работы являлось исследование возможности отделения макроколичеств америция от ряда примесных элементов с помощью сорбента, импрегнированного ТОДГА, для последующего определения содержания примесей в америциевых материалах. Структурная формула ТОДГА изображена на рис. 1.

В качестве носителя выбран сферический полистирол, сшитый дивинилбензолом, LPS-500 компании «Синтез полимерных сорбентов». Данный носитель обладает однородностью размера сферических гранул и хорошими механическими свойствами, обеспечивает низкое давление в хроматографических колонках, а главное его достоинство – превосходное удержание экстрагента.

Состав анализируемых растворов, полученных после растворения готового препарата диоксида америция-241, приведен в табл. 1.

На основании литературных данных о сорбции элементов сорбентом на основе ТОДГА [1-6] примеси, указанные в табл. 1, условно можно разделить на сильно- и слабосорбируемые. К сильносорбируемым

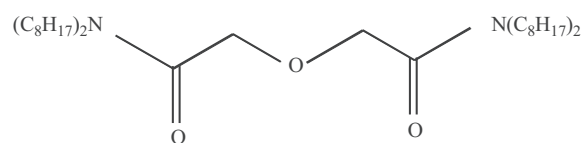


Рис. 1. Структурная формула ТОДГА (*n*-октил (–C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>))

из азотнокислых сред примесям относится церий (коэффициент распределения  $D_{Ce}$  более 100), к слабосорбируемым – натрий, калий, никель, цинк, алюминий, хром (III), кремний, титан (III), железо (III) (значения  $D_{Me}$  в азотнокислых средах меньше 100). При сорбции из солянокислых сред железо (III) выступает как сильносорбируемая примесь ( $D_{Fe(III)}$  более 100).

Поведение слабосорбируемых примесей в азотнокислых средах оценивали по поведению железа (III). Оптимальные условия отделения железа (III) являются подходящими и для отделения слабосорбируемых примесей, поскольку их коэффициенты распределения существенно ниже коэффициентов распределения железа (III). Поведение сильносорбируемых примесей оценивали по поведению церия (III).

Известно, что изотоп америций-241 обладает высокой радиоактивностью, что существенно затрудняет проведение длительных исследовательских работ, а также имеет высокую стоимость, поэтому промежуточные исследования по оптимизации условий разделения америция и примесей проводили с использованием аналога америция (III) – европия (III). Европий (III) является аналогом америция по ряду физических и химических свойств.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для проведения исследований использовали модельные растворы – растворы америция и европия (III) с известными количествами определяемых примесей. ТОДГА синтезирован ООО «Прайм-Инвест», г. Москва, по методике [7].

При выполнении исследований в режиме высокоэффективной жидкостной хроматографии использовали модульную хроматографическую систему со спектрофотометрическим детектированием. В состав системы входили три насоса высокого давления, система ввода образца – инжектор

Таблица 1

Примесный состав анализируемых растворов при диапазоне концентраций матричного элемента америция 3-15 г/дм<sup>3</sup>

Компонент	Диапазон концентраций, мг/дм <sup>3</sup>	Компонент	Диапазон концентраций, мг/дм <sup>3</sup>
Натрий	1-5	Железо	0.3-30
Кальций	0.1-10	Хром	0.3-30
Никель	1-10	Кремний	0.3-30
Марганец	0.1-10	Церий	0.3-30
Цинк	0.3-30	Титан	0.1-1
Алюминий	0.1-10		

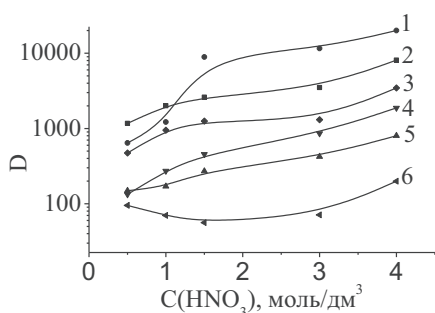


Рис. 2. Зависимости коэффициентов распределения ионов металлов от концентрации  $\text{HNO}_3$ : 1 – Th(IV), 2 – Np(IV), 3 – Eu(III), 4 – Ce(IV), 5 – U(VI), 6 – Fe(III). Условия эксперимента: массовая доля ТОДГА 30 %; масса навески сорбента 20 мг; концентрация элемента 20 мг/дм<sup>3</sup> (для нептуния 6.8 мг/дм<sup>3</sup>); диаметр зернения носителя 50-100 мкм; скорость потока 0.8 см<sup>3</sup>/мин.

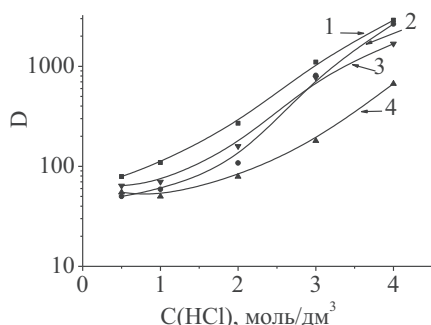


Рис. 3. Зависимости коэффициентов распределения ионов металлов от концентрации HCl: 1 – Th(IV), 2 – U(VI), 3 – Eu(III), 4 – Ce(III). Условия эксперимента: массовая доля ТОДГА 30 %; масса навески сорбента 20 мг; концентрация элемента 20 мг/дм<sup>3</sup>; диаметр зернения носителя 50-100 мкм; скорость потока 0.8 см<sup>3</sup>/мин.

«Rheodyne 7010», спектрофотометр, снабженный проточной кюветой с длиной светопоглощающего слоя 50 мм. Один из насосов высокого давления предназначен для подачи промывного раствора (раствор кислоты), другой – для подачи реагента, образующего светопоглощающий комплекс с исследуемым элементом, третий – для раствора элемента.

При выполнении исследований в варианте классической хроматографии использовали стеклянные колонки с внутренним диаметром 8 мм, заполненные сорбентом. Исследуемый раствор пропускали через колонку, затем на выходе собирали фракции элюата, в которых измеряли концентрацию исследуемого элемента спектрофотометрическим методом.

Сорбенты готовили следующим способом: ТОДГА растворяли в хлороформе, данную смесь приливали к навеске носителя и перемешивали до полного удаления паров хлороформа.

## Исследование влияния концентрации азотной и соляной кислот на извлечение нептуния (IV), тория (IV), урана (VI), церия (III), европия (III) и железа (III)

Для определения оптимальных условий применения сорбента исследовали влияние концентрации азотной и соляной кислот на извлечение европия (III) и элементов, относящихся к сильносорбируемым примесям. Кроме того, весьма интересным является исследование поведения таких актиноидов как нептуний (IV), торий (IV) и уран (VI), поскольку результаты исследования существенно расширят спектр возможного применения данного сорбента для разделения актиноидных элементов.

Сорбцию элементов изучали методом экстракционной хроматографии в режиме высокоэффективной жидкостной хроматографии путем построения фронтальных выходных кривых. При исследовании сорбции нептуния (IV), тория (IV), урана (VI), европия (III) и церия (IV) в качестве фотометрического реагента использовали арсеназо III, для железа (III) – роданид аммония.

По полученным фронтальным выходным кривым рассчитывали динамические коэффициенты распределения. Коэффициент распределения измеряли объемом раствора, который может быть профильтрован через слой сорбента до момента «проскока» в фильтрат заданной концентрации извлекаемого вещества. В качестве «проскоковой» концентрации использовали так называемую «половинную» концентрацию, которая в два раза меньше исходной. Целесообразность выбора в качестве «проскоковой» именно этой концентрации изложена в [8]. Динамические коэффициенты распределения вычисляли по формуле

$$D = \frac{w \cdot (t_{0,5C_{\text{исх}}} - t_{c6})}{m},$$

где  $w$  – объемная скорость потока раствора, см<sup>3</sup>/мин;  $t_{0,5C_{\text{исх}}}$  – время, соответствующее «половинной» концентрации извлекаемого вещества, мин;  $t_{c6}$  – время заполнения свободного объема колонки, мин;  $m$  – объем экстрагента в слое сорбента, см<sup>3</sup>.

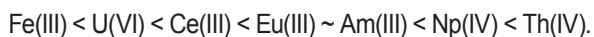
На рис. 2 и 3 приведены полученные зависимости коэффициентов распределения ряда элементов от концентрации азотной и соляной кислот.

Сравнение поведения америция и европия (III) было проведено в варианте классической хроматографии. Через колонки с сорбентом, представляющие собой заполненные наконечники автодозаторов, продавливали азотнокислые растворы америция и европия (III). Концентрация азотной кислоты составляла 3 и 4 моль/дм<sup>3</sup>. В качестве фотометрического реагента использовали арсеназо III. Полученные фронтальные выходные кривые представлены на рис. 4.

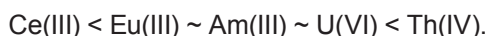


Из рис. 2 и 3 видно, что коэффициенты распределения элементов возрастают с увеличением концентрации кислот. Из рис. 4 видно, что выходные кривые для америция и европия (III) имеют схожий вид. Следовательно, коэффициенты распределения америция и европия (III) имеют близкие значения.

При извлечении элементов из растворов азотной кислоты коэффициенты распределения возрастают в ряду:



При извлечении элементов из солянокислых растворов коэффициенты распределения возрастают в ряду:



Большая разница коэффициентов распределения для пар элементов Np(IV)/U(VI), Th(IV)/U(VI), Eu(III)/Fe(III) при сорбции из азотнокислых сред позволяет предположить возможность использования сорбента на основе ТОДГА для их разделения. Кроме того, наибольшая разница коэффициентов распределения европия (III) (а значит, и америция) и церия (III) наблюдается при сорбции из солянокислых растворов, поэтому эта среда является наиболее оптимальной для их разделения.

### Емкость сорбентов, импрегнированных ТОДГА, по америцию

Емкость сорбентов является одним из факторов, определяющих возможность их использования для выделения макроколичеств веществ. Для отделения примесных элементов от сильносорбируемого макрокомпонента необходимо создать условия, позволяющие удерживать все количество макрокомпонента в процессе отделения микрокомпонентов.

Известно, что на емкость сорбентов влияет в основном количество импрегнированного экстрагента, а также состав водной фазы. Высокие коэффициенты распределения металлов при экстракции ТОДГА достигаются из растворов с высокой ионной силой, в которых активность воды понижена и ее конкурентные способности при взаимодействии с катионом металла, таким образом, подавлены. Высокая ионная сила способствует также образованию неионизированных металлсодержащих соединений, что существенно для экстракции. Поэтому введение в водную фазу солей-высаливателей, повышающих ионную силу раствора, приведет к возрастанию коэффициентов распределения извлекаемых веществ, а, следовательно, и емкости сорбентов. В эксперименте в качестве соли-высаливателя использовали нитрат аммония.

Исследование влияния состава сорбента и водной фазы на емкость проводили для сорбентов с диа-

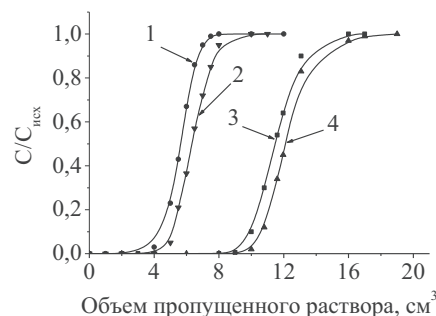


Рис. 4. Фронтальные выходные кривые элюирования америция и европия 3 моль/дм³ раствором HCl (1 – Am, 2 – Eu) и азотнокислым раствором NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> (3 – Am, 4 – Eu). Условия эксперимента: массовая доля ТОДГА 50 %; масса навески сорбента 0.3 г; массовая концентрация элемента 1.4 г/дм³; диаметр зернения носителя 50-100 мкм; скорость пропускания раствора 2.0 см³/мин.

метром зернения носителя 100-250 мкм, содержащими 30 % и 50 % ТОДГА.

Измерение емкости сорбентов проводили путем построения фронтальных выходных кривых растворов америция, содержащих различные количества азотной кислоты и нитрата аммония. Состав растворов америция приведен в табл. 2.

За емкость сорбента принимали емкость до «проскока», равную количеству америция, удерживаемого на колонке до момента появления америция в элюате. В качестве «проскоковой» условно приняли концентрацию, равную 5 мг/дм³.

Результаты эксперимента представлены на рис. 5. Из данного рисунка видно, что емкость сорбентов с увеличением содержания нитрата аммония и массовой доли ТОДГА закономерно возрастает. Максимальные значения емкости наблюдались при сорбции америция из раствора азотной кислоты с концентрацией 6 моль/дм³ (более 100 мг на 1 г сорбента). Однако при пропускании раствора азотной кислоты с данной концентрацией наблюдалось частичное слипание зерен сорбента, что существенно снижало скорость протекания раствора через колонку. При сорбции америция

Таблица 2

Состав растворов америция

Номер раствора	Концентрация Am, г/дм³	Концентрация HNO <sub>3</sub> , моль/дм³	Концентрация NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> , моль/дм³
1	1.4	3	0
2			1.6
3			3.2
4	1.4	4	0
5			1.6
6			3.2
7	1.4	6	0
8			1.6
9			3.2

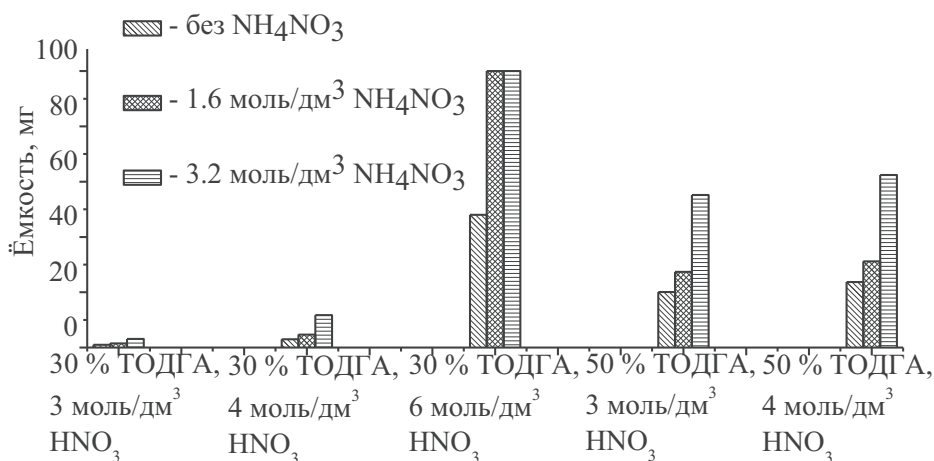


Рис. 5. Емкость сорбентов по америцию

сорбентом, содержащим 50 % ТОДГА, из раствора азотной кислоты с концентрацией 4 моль/дм<sup>3</sup>, содержащего нитрат аммония с концентрацией 3.2 моль/дм<sup>3</sup>, емкость сорбента составила порядка 60 мг/г сорбента. Такая емкость является достаточной для выделения америция в количестве (4 ± 1) мг, необходимом для отделения «химических» примесей.

### Хроматографическое отделение слабосорбируемых примесей (таких как железо (III)) от европия (III) из азотнокислых растворов

Возможность хроматографического разделения железа (III) и европия (III) в азотнокислых средах исследовали путем сравнения их выходных кривых при элюировании раствором азотной кислоты, содержащим нитрат аммония (рис. 6).

Из данного рисунка видно, что пики железа (III) и европия (III) не перекрываются. Полное отделение железа (III) от европия (III) (следовательно, и от америция) достигается при пропускании 5 см<sup>3</sup> раствора нитрата аммония с концентрацией 4 моль/дм<sup>3</sup> в растворе азотной кислоты с концен-

трацией 4 моль/дм<sup>3</sup>. Следовательно, данного объема будет достаточно и для отделения остальных слабосорбируемых примесей.

### Хроматографическое отделение сильносорбируемой примеси церия (III) от европия(III)

Преыдушие исследования показали, что наиболее благоприятной для разделения европия (III) и церия (III) является солянокислая среда. Возможность хроматографического разделения европия (III) и церия (III) в солянокислых средах исследовали путем сравнения выходных кривых европия (III) и церия (III) при элюировании раствором соляной кислоты с концентрацией 2 и 3 моль/дм<sup>3</sup> (рис. 7 и 8).

Из данных рисунков видно, что при элюировании раствором соляной кислоты с концентрацией 2 и 3 моль/дм<sup>3</sup> пики церия (III) и европия (III) не перекрываются, поэтому в таких условиях можно осуществить их разделение. В среде с концентрацией соляной кислоты 2 моль/дм<sup>3</sup> отделение церия (III) происходит быстрее, поэтому оптимальной средой для отделения церия (III) выбран раствор с данной концентрацией соляной кислоты.

### Анализ реальных растворов, содержащих америций

На основании представленных результатов исследований была разработана методика отделения америция от «химических» примесей и проведен анализ реальных растворов америция, полученных после растворения готового препарата диоксида америция-241 в растворе азотной кислоты.

Хроматографическое отделение америция от примесей можно разделить на следующие стадии: стадия 1 – введение аликвотной части анализируемого раствора америция; стадия 2 – элюирование слабосорбируемых примесей (Na, K, Ni, Zn, Al, Cr(III), Si, Ti(III) и Fe(III)) раствором нитрата аммония с концентрацией

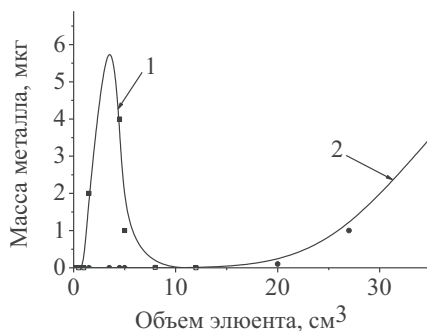


Рис. 6. Выходные кривые элюирования Eu(III) (1) и Fe(III) (2) азотнокислым раствором нитрата аммония. Условия эксперимента: массовая доля ТОДГА 50 %, диаметр зернения носителя 100-250 мкм, масса сорбента 0.5 г, скорость пропускания 1 см<sup>3</sup>/мин, C(NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>) = 4 моль/дм<sup>3</sup>, C(HNO<sub>3</sub>) = 4 моль/дм<sup>3</sup>

4 моль/дм<sup>3</sup> в растворе азотной кислоты с концентрацией 4 моль/дм<sup>3</sup>;  
стадия 3 – элюирование сильносорбируемой примеси церия (III) раствором соляной кислоты с концентрацией 2 моль/дм<sup>3</sup>.

Условия отделения америция от примесей приведены в табл. 3.

В ходе эксперимента анализировали раствор америция, раствор америция с добавкой, раствор добавки (смесь всех нормируемых «химических» примесей) и «холостой» раствор, представляющий собой смесь элюентов. Растворы пропускали через колонки, заполненные сорбентом на основе ТОДГА, далее колонки последовательно промывали раствором азотной кислоты, содержащим нитрат аммония, и раствором соляной кислоты. Элюаты, «холостой» раствор и раствор добавки анализировали спектрографическим методом по методике, разработанной ПО «Маяк».

Спектрографическая методика основана на возбуждении спектров в дуге переменного тока. Аликвотную часть пробы наносили на графитовый порошок, содержащий кобальт, высушивали, добавляли «носитель» и растирали. В качестве «носителя» использовали смесь оксида индия и фторопласта-4. Полученные пробы загружали в угольные электроды и проводили измерение. Анализ проводили по трем сериям измерений.

В табл. 4 приведен выход введенной добавки для каждой примеси. Максимальное отклонение от стопроцентного выхода составляет ± 40 %. С учетом значения погрешности методики, составляющей 50 %, можно сделать вывод, что в данных условиях исследуемые примеси выделяются полностью.

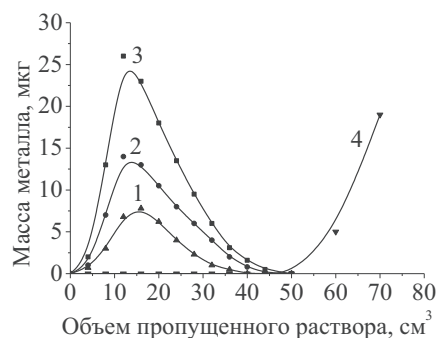


Рис. 7. Выходные кривые элюирования Se(III) и Eu(III): 1, 2, 3 – 30, 50, 100 мкг Се соответственно, 4 – 1 мг Еu. Условия эксперимента: элюент – 3 моль/дм<sup>3</sup> раствор HCl, массовая доля ТОДГА 50 %, диаметр зернения носителя 100-250 мкм, масса навески сорбента 0.5 г.

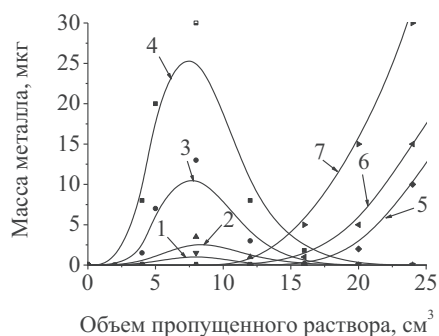


Рис. 8. Выходные кривые элюирования Se(III) и Eu(III) 2 моль/дм<sup>3</sup> раствором HCl (кривые 1, 2, 3, 4 – 2, 5, 20, 50 мкг Се соответственно; кривые 5, 6, 7 – 0.5, 1, 2 мг Еu соответственно). Условия эксперимента: массовая доля ТОДГА 50 %, масса навески сорбента 0.5 г.

Таблица 3

Условия отделения Am от «химических» примесей

Масса сорбента, г	Массовая доля ТОДГА, %	Концентрация Am, г/дм <sup>3</sup>	Концентрация HNO <sub>3</sub> и NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> , моль/дм <sup>3</sup>	Объем раствора смеси HNO <sub>3</sub> и NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> , см <sup>3</sup>	Концентрация HCl, моль/дм <sup>3</sup>	Объем раствора HCl, моль/дм <sup>3</sup>
0.5	50	3.0	4.0	4.0	2.0	11.0

Таблица 4

Результаты определения примесей в растворе после отделения Am

Примесный элемент	Значение массы примеси, введенной в раствор Am, мкг	Найденная средняя масса примеси в растворе Am, мкг	Найденная средняя масса примеси в растворе Am с добавкой, мкг	Найденное среднее значение массы примеси в добавке, мкг	Выход добавки, %
Na	10.0	9.7	23.7	14.0	140
Ca	2.0	1.6	3.0	1.4	70
Ni	10.0	7.0	16.7	9.7	97
Zn	2.0	2.0	4.7	2.7	135
Al	2.0	4.1	6.0	1.9	95
Cr	2.0	2.5	5.0	2.5	125
Si	6.0	1.3	9.5	8.2	137
Ti	2.0	0.5	2.1	1.6	80
Ce	2.0	0.1	1.9	1.8	90

Однако для оценки погрешности данной методики измерений необходим дополнительный набор статистических данных.

## ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ И ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучены свойства сорбента, представляющего собой сферический полистирол, сшитый дивинилбензолом, импрегнированный N,N,N',N'-тетра-п-октилдигликольамидом (ТОДГА). Выбраны оптимальные условия отделения слабосорбируемых примесей натрия, калия, никеля, цинка, алюминия, хрома (III), кремния, титана (III) и железа (III), а также сильносорбируемой примеси церия (III) от америция. Предложена методика хроматографического отделения америция от примесей для последующего спектрографического определения примесей в диоксиде америция-241.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Extraction of actinides(III), (IV), (V), (VI) and lanthanides(III) by structurally tailored diamides / Sasaki Y. et [al.] // Solvent Extraction and Ion Exchang. 2002. V. 20. № 1. P. 21-34.

2. [Электронный ресурс] [http://www.eichrom.com/products/info/dga\\_resin.cfm](http://www.eichrom.com/products/info/dga_resin.cfm) / сайт фирмы «Eichrom» (дата обращения 20.01.2012).

3. [Электронный ресурс] [http://www.triskem-international.com/de/iso\\_album/ft\\_resine\\_dga\\_de\\_110211.pdf](http://www.triskem-international.com/de/iso_album/ft_resine_dga_de_110211.pdf) / сайт фирмы «Triskem» (дата обращения 20.01.2012).

4. Extraction behavior of cerium by tetraoctyldiglycolamide from nitric acid solutions / Metwally E. et [al.] // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2010. V. 286. P. 217-221.

5. The Novel Extractants, Diglycolamides, for the Extraction of Lanthanides and Actinides in HNO<sub>3</sub>-n-Dodecane System / Sasaki Y. et [al.] // Solv. Extr. Ion Exch. 2001. V. 19. № 1. P. 91-103.

6. A Method for the Determination of Extraction Capacity and Its Application to N,N,N'-tetraalkylderivatives of Diglycolamidemonoamiden-dodecane Media / Sasaki Y. et [al.] // Anal. Chim. Acta. 2005. V. 543. № 1-2. P. 31-37.

7. Extraction of Alkine Earth Metal Ion with TODGA in presence of ionic liquids / Turanov A.N et [al.] // Solv. Extr. Ion Exch. 2010. V. 28. № 3. P. 367-387.

8. Экстракционно-хроматографическое отделение плутония от других веществ с применением альфа-детектора для измерения его концентрации в растворах / Марков В.К. и [др.] // Радиохимия. 1976. Т. 18. № 5. С. 751-765.

## SEPARATION OF MACROAMOUNTS OF AMERICIUM WITH TETRAOKTYLDIGLYKOLAMID IMPREGNATED SORBENT FOR SUBSEQUENT SPECTRAL DETERMINATION OF IMPURITIES IN AMERICIUM DIOXIDE

**E.V. Chukhlantseva<sup>1</sup>, N.L. Sergeeva<sup>1</sup>, A.N. Usolkin<sup>1</sup>, L.K. Neudachina<sup>2</sup>, V.E. Baulin<sup>3,4</sup>, A.Yu. Tsivadze<sup>4</sup>**

<sup>1</sup> Federal State Unitary Enterprise "Production Association Mayak"  
31 Lenin St., Ozyorsk 456780, Russia  
[ekaterina4\\_82@mail.ru](mailto:ekaterina4_82@mail.ru)

<sup>2</sup>Ural Federal University named after the first President of Russia B.N.Yeltsin  
51 Lenin Avenue, Ekaterinburg 620083, Russia  
[Ludmila.Neudachina@usu.ru](mailto:Ludmila.Neudachina@usu.ru)

<sup>3</sup>Russian academy of sciences A.N. Frumkin Institute of Physical chemistry and Electrochemistry  
RAS

31-4 Leninsky Avenue, Moscow 119991, Russia

<sup>4</sup>Russian academy of sciences Institute of Physiologically Active Compounds RAS, 1 Severny Passage, Chernogolovka 142432, Russia

Some sorbents impregnated with tetraoktyldiglycolamid were used for the separation of americium macroamounts from a number of pollutants. The effect of nitric and hydrochloric acids on neptunium (IV), uranium (VI), americium (III), europium (III), cerium (III), thorium (IV) and iron (III) sorption was studied. The optimal conditions for the separation of microamounts of cerium (III), sodium, potassium, nickel, zinc, aluminium, chromium (III), silicon, titanium (III), iron (III) and macroamounts of europium (III) and americium were stated. An extraction-chromatographic method of americium macroamounts separation for subsequent spectrographic determination of impurities in <sup>241</sup>AmO<sub>2</sub> was developed and tested on the real samples. The results showed the applicability of the method to impurities separation for their spectrographic determination in <sup>241</sup>AmO<sub>2</sub>.

**Key words:** extraction chromatography, tetraoktyldiglycolamid, support, impurity, cerium, americium dioxide.