

## Растворимость нитрата радия в растворах азотной кислоты

© П. С. Буткалюк<sup>а\*</sup>, И. Л. Буткалюк<sup>а</sup>, Р. А. Кузнецов<sup>\*\*б</sup>, А. С. Куприянов<sup>а</sup>, Р. Г. Абдуллоев<sup>а</sup>

<sup>а</sup> Научно-исследовательский институт атомных реакторов, 433510, Димитровград Ульяновской обл.,  
Западное шоссе, д. 9; \* e-mail: orip@niiar.ru

<sup>б</sup> Димитровградский инженерно-технологический институт – филиал Национального исследовательского ядерного  
университета «МИФИ», 433511, Димитровград Ульяновской обл., ул. Куйбышева, д. 294;

\*\* e-mail: RAKuznetsov@mephi.ru

Получена 15.01.2018, после доработки 02.03.2018, принята к публикации 05.03.2018

УДК 621.039.3

Определена растворимость нитрата радия в растворах  $\text{HNO}_3$  высоких концентраций. Установлено, что растворимость нитрата радия уменьшается от  $\sim 1 \cdot 10^{-3}$  до  $\sim 2 \cdot 10^{-5}$  моль/л при увеличении концентрации  $\text{HNO}_3$  от 13.5 до 22 моль/л. Растворимость нитрата радия в исследованном диапазоне концентраций  $\text{HNO}_3$  в 3–6 раз выше растворимости нитрата бария в аналогичных условиях.

**Ключевые слова:** радий-226, нитрат радия, азотная кислота.

**DOI:** 10.1134/S0033831119010039

Поведение нитрата радия в системе  $\text{HNO}_3$ – $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ – $\text{H}_2\text{O}$  аналогично поведению нитратов стронция и бария, хорошо растворимых в разбавленной и плохо растворимых в концентрированной  $\text{HNO}_3$  [1, 2]. Растворимость  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  в  $\text{HNO}_3$  подробно изучена в работах [3–5]. По данным работы [3], в водных растворах  $\text{HNO}_3$  она уменьшается от 9.2 мас% в дистиллированной воде до  $1.9 \cdot 10^{-5}\%$  в 92%-ной  $\text{HNO}_3$  при 25°C. Растворимость  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в воде немного больше растворимости  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  и составляет 12.2 мас% (13.9 г/100 г воды, или 0.388 моль/л) при 20°C [6]. Надежные количественные данные о растворимости  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в концентрированных растворах  $\text{HNO}_3$  в доступной нам литературе отсутствуют. Эти данные необходимы для определения параметров разрабатываемого технологического процесса производства  $^{227}\text{Ac}$  и  $^{228}\text{Th}$ , предусматривающего облучение  $^{226}\text{Ra}$  в высокопоточном реакторе СМ и последующее отделение продуктов активации от материала мишени методом кристаллизации малорастворимых нитратов [7, 8].

Целью данной работы является экспериментальное определение растворимости  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в системе  $\text{HNO}_3$ – $\text{H}_2\text{O}$  при концентрациях  $\text{HNO}_3$  65–97 мас%.

### Экспериментальная часть

Экспериментальное определение растворимости нитратов проводили с использованием известной методики определения растворимости (измерение концентрации элемента в насыщенном растворе), адаптированной к реализации в условиях радиационно-защитных боксов. Первая серия экспериментов предусматривала достижение равновесия «сверху», т.е. проводили кристаллизацию  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  при увеличении концентрации  $\text{HNO}_3$  за счет добавления дымящей  $\text{HNO}_3$  к водному раствору  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ . Во второй серии экспериментов равновесие достигалось «снизу», т.е. проводилось частичное растворение заранее сформированного осадка  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ .

Корректность применяемой методики эксперимента была подтверждена в серии предварительных экспериментов с использованием бария как имитатора радия. Результаты этого эксперимента были использованы и для выбора условий эксперимента с радием.

### Материалы и методы

Для исследования использовали нитрат и карбонат бария марки х.ч., дымящую  $\text{HNO}_3$  с массовым содержанием  $\text{HNO}_3$  99.65%. Массовую долю кислоты определяли потенциометрическим титрованием раствором  $\text{NaOH}$  с использованием программы НПП «СЕМИКО» [9], а также по известной зависимости плотности от температуры и концентрации раствора [10].

Аликвоты растворов отбирали весовым методом с использованием аналитических весов Sartorius ED224S (Sartorius AG, Германия) с ценой деления  $\pm 0.0001$  г. Значения pH растворов измеряли при помощи pH-метра HANNA-HI 2210 со стеклянными электродами HI 1131B (Hanna Instruments). Калибровку pH-метра осуществляли при помощи стандартных буферных растворов с pH 9.18, 6.86 и 4.01 (ООО «Химтитры»).

Содержание бария в растворе определяли с использованием радиоактивного изотопа  $^{133}\text{Ba}$  (производства НИИАР) с известной удельной активностью. Объемную активность  $^{133}\text{Ba}$  определяли методом  $\gamma$ -спектрометрии при помощи полупроводникового  $\gamma$ -спектрометра с коаксиальным Ge–Li-детектором типа ДГДК-В150 (энергетическое разрешение 3.0 кэВ по линии 1.3 МэВ). Для градуировки спектрометра использовали образцовые радиоактивные растворы (ОРР). Расшифровку  $\gamma$ -спектров проводили в полуавтоматическом режиме при помощи стандартного программного обеспечения фирмы «ГринСтар».

Содержание  $^{226}\text{Ra}$  определяли с помощью  $\alpha$ -спектрометра на основе кремниевых PIPS-детекторов ПДПА-1К (ОАО «ИФТП», Дубна, Россия) и амплитудного анализатора импульсов АЦП-8К-И2. Образцы (источники) для измерения  $\alpha$ -излучения  $^{226}\text{Ra}$  готовили нанесением 10–25 мкл анализируемого раствора на подложку из нержавеющей стали с последующим упариванием и прокалкой на электроплитке с открытой спиралью для отгонки  $^{222}\text{Rn}$ . Перед измерением  $\alpha$ -спектра подготовленный образец выдерживали в течение 1.5 ч, что необходимо для снижения активности короткоживущих дочерних продуктов распада  $^{222}\text{Rn}$ . Для градуировки спектрометров использовали образцовые спектрометрические  $\alpha$ -источники (ОСАИ).

Содержание нерадиоактивных примесей в препаратах  $^{226}\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  определяли методом атомно-эмиссионного анализа с использованием установки, представляющей собой искровой источник возбуждения спектров ИВС-28, смонтированный внутри радиационно-защитного бокса, и спектрограф ИСП-1, соединенный с этим источником при помощи оптического выхода.

#### Методика очистки радия

В работе использовали препарат нитрата радия, выделенный из отработавших срок службы радиевых источников  $\gamma$ -излучения. Вскрытие платиновых оболочек источников осуществляли путем растворения в царской водке. Полученный препарат радия содержал значительные количества солей платины и других примесей. Очистку препарата от примесей проводили в два этапа.

На первом этапе проводили совместное осаждение  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  с  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$  из раствора концентрированной  $\text{HNO}_3$  по методике, аналогичной описанной в работе [11]. К 50 мл раствора  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  (~10 мг) в 7 моль/л  $\text{HNO}_3$  добавляли в качестве носителя 500 мг  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ , затем добавляли 50 мл 15.6 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Полученный раствор упаривали до объема 75 мл, охлаждали в течение 4 ч. Затем добавляли 25 мл 15.6 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Операции упаривания, охлаждения и добавления кислоты повторили еще 4 раза. Полученный осадок, содержащий нитраты радия и свинца, отделили от раствора декантацией и промыли тремя порциями 15.6 моль/л  $\text{HNO}_3$ .

Второй этап очистки включал хроматографическую очистку радия от свинца и щелочноземельных элементов на двух колонках с катионообменной смолой Dowex 50×8. Препарат растворяли в растворе 0.02 моль/л этилендиаминтетрауксусной кислоты ( $\text{H}_4\text{ЭДТА}$ ) в ацетатно-аммиачном буферном растворе с pH 4.5, из которого проводили сорбцию радия и бария. Для удобства контроля процесса очистки радия к препарату перед подачей на колонку добавляли раствор, содержащий  $^{133}\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ , с активностью

**Таблица 1.** Результаты атомно-эмиссионного анализа раствора  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$

Элемент	Содержание, % от массы $^{226}\text{Ra}$
Al	0.08
Ca	0.45
Cr, Fe, Mg, Mn	<0.08
Cu	<0.03
Ni, Ba, Pt	<0.25
Pb	0.50
Na	0.75
Si	0.25

$^{133}\text{Ba}$  ~4·10<sup>6</sup> Бк. Элюирование солей бария проводили раствором 0.02 моль/л  $\text{H}_4\text{ЭДТА}$ , pH которого доводили раствором  $\text{NH}_3$  до значения 8.8 (условия разделения взяты из работы [12]), затем элюировали радий аналогичным раствором с pH 9.7. Аффинажную очистку  $^{226}\text{Ra}$  на второй колонке проводили путем сорбции из 0.02 моль/л  $(\text{NH}_4)_2\text{ЭДТА}$  в ацетатно-аммиачном буферном растворе с pH 4.5. Колонку промывали бидистиллированной водой, затем раствором 0.1 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Радий элюировали раствором 8 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Полученный раствор  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  упаривали досуха и нагревали в течение 30 мин при температуре 300°C для разложения следов солей аммония. Сухой остаток растворяли в 0.5 мл 2.5 моль/л  $\text{HNO}_3$ .

Содержание примесей в полученном препарате определяли методом атомно-эмиссионного анализа, результаты которого приведены в табл. 1. Суммарное содержание примесей в полученном образце составило менее 3.1% относительно массы  $^{226}\text{Ra}$ . Содержание примесей Pb и Ba (~0.5 и <0.25%), нитраты которых способны кристаллизоваться совместно с  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  и, таким образом, влиять на результаты определения его растворимости, было незначительным.

#### Определение растворимости $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ в растворах $\text{HNO}_3$

Для определения времени достижения равновесия между осадком  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  и раствором была определена скорость изменения концентрации бария в растворе. В четыре пробирки вместимостью 10 мл вносили по 0.50 мл раствора, содержащего 4.95 мг  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ , меченого радионуклидом  $^{133}\text{Ba}$ . Затем в первые две пробирки добавляли 1.5749 и 1.5747 г деионизированной воды и 4.9440 и 4.9580 г дымящей  $\text{HNO}_3$ . В третью и четвертую пробирки добавляли 7.6089 и 7.6145 г 99.65%-ной дымящей  $\text{HNO}_3$ . Во всех четырех пробирках выпал осадок. Растворы с осадками в третьей и четвертой пробирках выдерживали в течение 6 сут, от растворов отбирали аликваты массой 0.9053 и 1.1487 г, затем в пробирки добавляли 2.4008 и 2.3205 г деионизированной воды соответственно. Эксперименты проводили при температуре  $24.6 \pm 0.9^\circ\text{C}$ .

От полученных растворов через заданные проме-

жутки времени отбирали аликвоты для определения содержания бария (по  $^{133}\text{Ba}$ ). Перед отбором каждой аликвоты содержимое пробирок центрифугировали в течение 10 мин с ускорением  $\sim 1500g$ .

Учитывая результаты, полученные для  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ , в последующих экспериментах исходили из того, что равновесие при осаждении  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  достигается за  $\sim 24$  ч, а при разбавлении сформировавшегося осадка – менее чем за 2 ч.

Эксперименты по определению растворимости  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  при достижении равновесия «сверху» выполняли по следующей методике.

В две пробирки вместимостью 10.0 мл вносили раствор, содержащий 19 мг  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ , меченный радионуклидом  $^{133}\text{Ba}$ , добавляли 6.2255 и 6.2247 г дымящей  $\text{HNO}_3$  с массовой долей 99.65%. Растворы перемешивали и оставляли для кристаллизации на 24 ч. После центрифугирования отбирали от растворов аликвоты объемом 0.100 мл и добавляли в каждую пробирку по 0.200 мл деионизованной воды. Содержимое пробирок осторожно перемешивали и выдерживали в термостате при  $20 \pm 1^\circ\text{C}$  в течение 4 ч. Затем процедуру отбора пробы повторяли. Содержание  $\text{Ba}$  в растворе определяли по активности  $^{133}\text{Ba}$  методом  $\gamma$ -спектрометрического анализа, концентрацию  $\text{HNO}_3$  определяли методом потенциометрического титрования раствором  $\text{NaOH}$ . Всего было отобрано 10 проб, что соответствовало изменению концентрации  $\text{HNO}_3$  от 93 до 62%.

#### *Определение растворимости $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ при достижении равновесия «снизу»*

В две тарированные пробирки вместимостью 10 мл, содержащие 6.8062 и 6.8901 г 99.65%-ной  $\text{HNO}_3$ , вносили по 0.200 мл раствора, содержащего 2.4 мг  $^{226}\text{Ra}$ . Растворы перемешивали и оставляли для кристаллизации на 1 сут. Далее от растворов над осадками  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  отбирали аликвоты объемом 0.200 мл в пробирки, которые центрифугировали в течение 10 мин с ускорением  $\sim 1500g$  для удаления следов твердой фазы. От этих растворов отбирали по 5 аликвот массой 40–60 мг каждая. Одну аликвоту использовали для определения объемной активности  $^{226}\text{Ra}$  методом  $\alpha$ -спектрометрического анализа, остальные использовали для определения концентрации  $\text{HNO}_3$  методом потенциометрического титрования раствором  $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ .

В пробирки с  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  вносили по 0.200 мл деионизованной воды и осторожно перемешивали содержимое пробирок (покачиванием) в течение 1 мин. Повторный отбор проб производили через 1–3 сут. Эксперименты проводили при температуре  $25 \pm 3^\circ\text{C}$ . Термостатирование в более узком диапазоне температур в условиях радиационно-защитного бокса в течение длительного (более двух недель) времени было технически невозможно. Всего было проведе-

**Таблица 2.** Составы исходных растворов

Номер пробирки	$m(\text{HNO}_3, 99.65\%), \text{ г}$	$m(\text{H}_2\text{O}), \text{ г}$	$V[^{226}\text{Ra}(\text{NO}_3)_2], \text{ мл}$
1	4.5620	0	0.100
2	4.1207	0.120	0.100
3	3.9404	0.250	0.100
4	3.6313	0.250	0.200
5	3.3204	0.350	0.200
6	3.1817	0.450	0.200
7	3.1837	0.600	0.200
8	2.9976	0.750	0.200
9	2.8646	0.700	0.400
10	2.7256	0.800	0.400

но тринадцать последовательных измерений при изменении концентрации  $\text{HNO}_3$  от 94 до 62%.

#### *Определение растворимости $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ при достижении равновесия «сверху»*

В 10 пробирок вместимостью 10 мл последовательно вносили навески 99.65%-ной  $\text{HNO}_3$ , воды и раствора  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в 1 моль/л  $\text{HNO}_3$  с объемной активностью  $^{226}\text{Ra} \sim 2.5$  мКи/мл. Состав исходных растворов приведен в табл. 2.

Пробирки выдерживали в течение 24 ч при температуре  $19.2 \pm 0.5^\circ\text{C}$ , поддерживаемой с помощью водяной бани. Затем от каждого раствора отбирали аликвоту объемом 0.20 мл в центрифужную пробирку. Аликвоты центрифугировали в течение 10 мин с ускорением  $\sim 1500g$  для удаления следов твердой фазы. От растворов в центрифужных пробирках отбирали по 5 аликвот массой 40–60 мг каждая. Одну аликвоту из каждой центрифужной пробирки разбавляли весовым методом и использовали для определения объемной активности  $^{226}\text{Ra}$  методом  $\alpha$ -спектрометрии, остальные использовали для определения концентрации  $\text{HNO}_3$  методом потенциометрического титрования раствором  $\text{NaOH}$ .

#### *Расчет растворимости и оценка погрешности измерений*

Массовую долю  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в растворах рассчитывали по формуле

$$\omega[\text{Ra}(\text{NO}_3)_2] = 100\% \cdot M[\text{Ra}(\text{NO}_3)_2] A(^{226}\text{Ra}) m_{\text{разб}} / [M(^{226}\text{Ra}) m_{\alpha} m_{\text{аликв}} \cdot 3.7 \cdot 10^{10}],$$

где  $M[\text{Ra}(\text{NO}_3)_2]$  – молярная масса  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$ , 350.035 г/моль;  $M(^{226}\text{Ra})$  – атомная масса  $^{226}\text{Ra}$ , 226.025 г/моль;  $A(^{226}\text{Ra})$  – активность  $^{226}\text{Ra}$  в источнике, Бк;  $m_{\text{аликв}}$  – масса аликвоты до разбавления, г;  $m_{\text{разб}}$  – масса раствора после разбавления, г;  $m_{\alpha}$  – масса препарата, нанесенного на источник для  $\alpha$ -спектрометрии из разбавленного раствора, г.

Массовую долю  $\text{HNO}_3$  рассчитывали по формуле

$$\omega(\text{HNO}_3) = 100\% \cdot M(\text{HNO}_3) V_{\text{NaOH}} C_{\text{NaOH}} / m_{\text{T}},$$

где  $M(\text{HNO}_3)$  – молярная масса  $\text{HNO}_3$ , 60.013 г/моль;



$m_T$  – масса аликвоты, использованной для титрования;  $C_{\text{NaOH}}$  – концентрация раствора NaOH;  $V_{\text{NaOH}}$  – объем NaOH, использованного на титрование аликвоты раствора.

Для вычисления молярных концентраций  $\text{HNO}_3$  и  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  использовали табличные данные зависимости плотности растворов  $\text{HNO}_3$  от массовой доли и температуры ([13], табл. 2-66). Так как во всем исследуемом диапазоне концентраций  $\text{HNO}_3$  растворимость радия мала, отличие плотности насыщенного раствора  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  от плотности  $\text{HNO}_3$  считали пренебрежимо малым и при вычислении молярной концентрации не учитывали.

При вычислении массовой доли  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  учитывали следующие компоненты погрешности: погрешность отбора аликвот из исходного и разбавленного растворов (~0.3–0.8%), погрешность разбавления (0.08–0.2%), погрешность эталона  $^{226}\text{Ra}$  (~3.2%), погрешность обработки  $\alpha$ -спектра (1–2%). Для снижения случайной погрешности, возникающей за счет статистической природы  $\alpha$ -распада, набор спектра проводили до получения статистики в  $10^5$ – $10^6$  импульсов. Для снижения погрешности отбора аликвот источники для  $\alpha$ -спектрометрии готовили весовым методом. При этом вводили поправку на испарение раствора с поверхности источника за время взвешивания путем построения градуировочного графика массы от времени и экстраполяции его на время нанесения раствора на источник. Суммирование погрешностей отдельных величин проводили по закону сложения ошибок [14].

При вычислении массовой доли  $\text{HNO}_3$  учитывали погрешности отбора аликвоты (0.2–0.7%), погрешность определения концентрации (0.5%) и объема титранта (0.9–1.8%). Случайную компоненту погрешности оценивали, проводя 3–4 параллельных титрования для каждой точки. С учетом небольшого числа параллельных титрований вклад случайной компоненты в суммарную погрешность определения массовой доли  $\text{HNO}_3$  был наибольший.

Иные потенциальные погрешности, связанные с сорбцией радионуклида на стенках посуды, поверхности наконечников пипеток, испарением  $\text{HNO}_3$  во время переноса раствора из пробирок в колбы, принимали пренебрежимо малыми и в суммарную погрешность определения не включали.

## Результаты и обсуждение

### Определение растворимости $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ в растворах $\text{HNO}_3$

На рис. 1 представлен график изменения концентрации  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  в растворе после добавления дымящей  $\text{HNO}_3$  и после разбавления полученного насыщенного раствора дистиллированной водой. Из по-

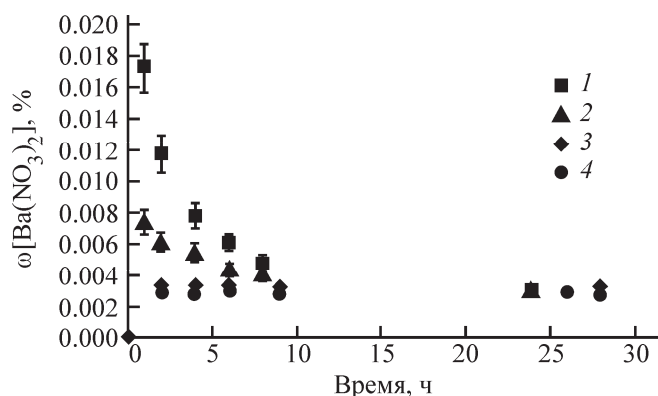


Рис. 1. Скорость изменения концентрации  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  в растворе при достижении равновесия «сверху» (1, 2, увеличение концентрации  $\text{HNO}_3$  от 0 до 15.75 моль/л) и «снизу» (3, 4, разбавление  $\text{HNO}_3$  от 22.09 до 16.25 моль/л).

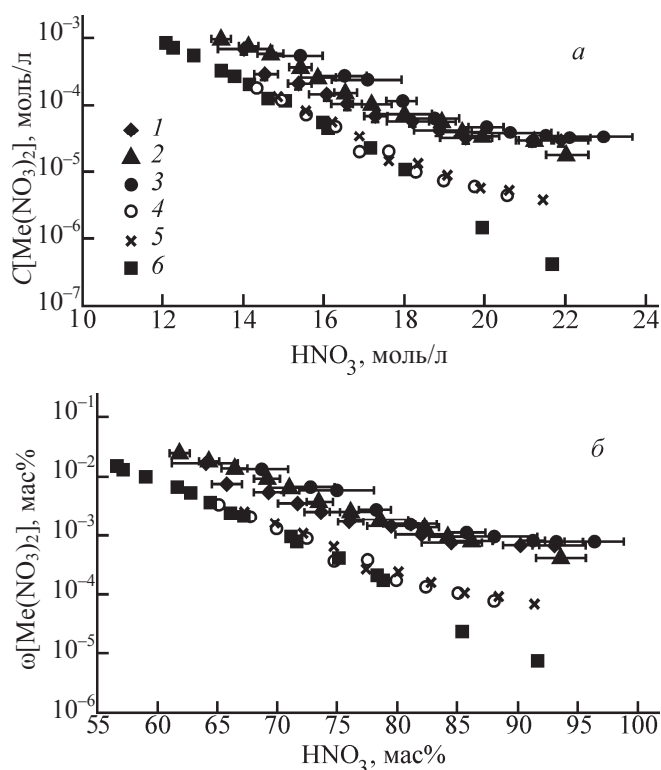


Рис. 2. Зависимость растворимости (а – моль/л, б – мас%)  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  (1–3) и  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  (4, 5) от концентрации  $\text{HNO}_3$ ; б – литературные данные [3] для  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ .

лученных данных видно, что при осаждении  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  дымящей  $\text{HNO}_3$  концентрация бария выходит на постоянный уровень через 24–30 ч. При разбавлении раствора (частичное растворение осадка) равновесие устанавливается менее чем через 2 ч.

На рис. 2 представлена зависимость растворимости  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  от концентрации  $\text{HNO}_3$  в системе  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2\text{--H}_2\text{O--HNO}_3$ . Удовлетворительное соответствие полученных результатов с данными работы [3] свидетельствует о корректности используемой нами методики определения растворимости нитратов бария и радия.

Таблица 3. Растворимость  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в системе  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2\text{--H}_2\text{O--HNO}_3$ 

Номер серии	Условия равновесия	$T, ^\circ\text{C}$	Концентрация $\text{HNO}_3$		Растворимость $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$	
			мас%	моль/л	мас%	моль/л
1	«Снизу»	24.0	$93.1 \pm 2.5$	$21.9 \pm 0.7$	$(6.8 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$	$(2.89 \pm 0.17) \cdot 10^{-5}$
		24.0	$90.3 \pm 1.5$	$21.2 \pm 0.4$	$(7.0 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$	$(2.94 \pm 0.17) \cdot 10^{-5}$
		26.5	$84.5 \pm 2.5$	$19.5 \pm 0.7$	$(7.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$	$(3.17 \pm 0.17) \cdot 10^{-5}$
		26.5	$82.0 \pm 2.3$	$18.8 \pm 0.6$	$(1.02 \pm 0.06) \cdot 10^{-3}$	$(4.22 \pm 0.25) \cdot 10^{-5}$
		25.8	$79.6 \pm 2.2$	$18.2 \pm 0.6$	$(1.45 \pm 0.08) \cdot 10^{-3}$	$(6.0 \pm 0.3) \cdot 10^{-5}$
		24.0	$76.1 \pm 1.1$	$17.3 \pm 0.3$	$(1.71 \pm 0.10) \cdot 10^{-3}$	$(7.0 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$
		28.0	$73.7 \pm 1.5$	$16.6 \pm 0.4$	$(2.55 \pm 0.15) \cdot 10^{-3}$	$(10.3 \pm 0.6) \cdot 10^{-5}$
		26.0	$71.8 \pm 1.8$	$16.1 \pm 0.5$	$(3.49 \pm 0.20) \cdot 10^{-3}$	$(14.1 \pm 0.8) \cdot 10^{-5}$
		27.0	$69.3 \pm 1.2$	$15.4 \pm 0.3$	$(5.3 \pm 0.3) \cdot 10^{-3}$	$(2.11 \pm 0.12) \cdot 10^{-4}$
		23.0	$65.9 \pm 1.3$	$14.6 \pm 0.4$	$(7.3 \pm 0.4) \cdot 10^{-3}$	$(2.89 \pm 0.16) \cdot 10^{-4}$
		23.0	$64 \pm 3$	$14.0 \pm 0.7$	$(1.72 \pm 0.10) \cdot 10^{-2}$	$(6.8 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$
2	«Снизу»	24.0	$93.6 \pm 2.1$	$22.0 \pm 0.6$	$(4.29 \pm 0.25) \cdot 10^{-4}$	$(1.82 \pm 0.11) \cdot 10^{-5}$
		24.5	$90.8 \pm 1.7$	$21.3 \pm 0.5$	$(6.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$	$(2.78 \pm 0.16) \cdot 10^{-5}$
		26.5	$86.1 \pm 1.6$	$19.9 \pm 0.4$	$(8.1 \pm 0.5) \cdot 10^{-4}$	$(3.36 \pm 0.19) \cdot 10^{-5}$
		26.5	$84.2 \pm 1.9$	$19.4 \pm 0.5$	$(9.6 \pm 0.5) \cdot 10^{-4}$	$(3.99 \pm 0.21) \cdot 10^{-5}$
		25.8	$82.3 \pm 1.2$	$18.9 \pm 0.3$	$(1.38 \pm 0.08) \cdot 10^{-3}$	$(5.7 \pm 0.3) \cdot 10^{-5}$
		24.0	$78.8 \pm 2.4$	$18.0 \pm 0.7$	$(1.82 \pm 0.11) \cdot 10^{-3}$	$(7.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-5}$
		28.0	$76.1 \pm 1.8$	$17.2 \pm 0.5$	$(2.57 \pm 0.15) \cdot 10^{-3}$	$(10.5 \pm 0.6) \cdot 10^{-5}$
		26.0	$73.5 \pm 1.1$	$16.6 \pm 0.3$	$(3.71 \pm 0.22) \cdot 10^{-3}$	$(15.0 \pm 0.9) \cdot 10^{-5}$
		27.0	$71.1 \pm 1.7$	$15.9 \pm 0.5$	$(6.4 \pm 0.4) \cdot 10^{-3}$	$(2.59 \pm 0.14) \cdot 10^{-4}$
		23.0	$69.1 \pm 1.1$	$15.4 \pm 0.3$	$(9.2 \pm 0.5) \cdot 10^{-3}$	$(3.69 \pm 0.20) \cdot 10^{-4}$
		23.0	$66.4 \pm 1.2$	$14.7 \pm 0.3$	$(1.42 \pm 0.08) \cdot 10^{-2}$	$(5.7 \pm 0.3) \cdot 10^{-4}$
		23.0	$64.3 \pm 0.8$	$14.1 \pm 0.2$	$(1.88 \pm 0.11) \cdot 10^{-2}$	$(7.4 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$
		23.0	$61.8 \pm 0.9$	$13.5 \pm 0.2$	$(2.45 \pm 0.14) \cdot 10^{-2}$	$(9.6 \pm 0.6) \cdot 10^{-4}$
3	«Сверху»	19.2	$96.4 \pm 2.5$	$22.9 \pm 0.8$	$(7.7 \pm 0.5) \cdot 10^{-4}$	$(3.29 \pm 0.19) \cdot 10^{-5}$
		19.2	$93.3 \pm 2.1$	$22.1 \pm 0.6$	$(7.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$	$(3.26 \pm 0.19) \cdot 10^{-5}$
		19.2	$91.2 \pm 1.1$	$21.5 \pm 0.3$	$(8.2 \pm 0.5) \cdot 10^{-4}$	$(3.47 \pm 0.20) \cdot 10^{-5}$
		19.2	$88.0 \pm 3.7$	$20.7 \pm 1.0$	$(9.3 \pm 0.5) \cdot 10^{-4}$	$(3.92 \pm 0.23) \cdot 10^{-5}$
		19.2	$85.7 \pm 1.6$	$20.0 \pm 0.4$	$(1.12 \pm 0.07) \cdot 10^{-3}$	$(4.7 \pm 0.3) \cdot 10^{-5}$
		19.2	$81.1 \pm 2.3$	$18.8 \pm 0.6$	$(1.50 \pm 0.09) \cdot 10^{-3}$	$(6.3 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$
		19.2	$78.1 \pm 1.4$	$17.9 \pm 0.4$	$(2.75 \pm 0.16) \cdot 10^{-3}$	$(11.4 \pm 0.7) \cdot 10^{-5}$
		19.2	$75 \pm 3$	$17.1 \pm 0.9$	$(5.8 \pm 0.3) \cdot 10^{-3}$	$(2.37 \pm 0.14) \cdot 10^{-4}$
		19.2	$72.8 \pm 2.1$	$16.5 \pm 0.6$	$(6.5 \pm 0.4) \cdot 10^{-3}$	$(2.65 \pm 0.16) \cdot 10^{-4}$
		19.2	$68.7 \pm 2.3$	$15.4 \pm 0.6$	$(1.32 \pm 0.08) \cdot 10^{-2}$	$(5.3 \pm 0.3) \cdot 10^{-4}$

Определение растворимости  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в растворах  $\text{HNO}_3$

Экспериментальные данные по растворимости  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  в  $\text{HNO}_3$  представлены на рис. 2 и в табл. 3. Результаты выполненных экспериментов показали, что растворимость  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  уменьшается от  $\sim 1 \cdot 10^{-3}$  до  $\sim 2 \cdot 10^{-5}$  моль/л при увеличении концентраций  $\text{HNO}_3$  от 13.5 до 22 моль/л. Данные, полученные при достижении равновесия «сверху» и «снизу», удовлетворительно (в пределах погрешности определения) согласуются между собой. Растворимость  $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$  (моль/л) в исследованном диапазоне концентраций  $\text{HNO}_3$  в 3–6 раз больше растворимости  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  в аналогичных условиях.

Список литературы

- [1] Вдовенко В. М., Дубасов Ю. В. Аналитическая химия радия. Сер.: Аналитическая химия элементов. Л.: Наука, 1973. 191 с.
- [2] Проценко П. И., Разумовская О. Н., Брыкова Н. А. Справочник по растворимости нитритных и нитратных солевых систем. Л.: Химия, 1971. 272 с.
- [3] Greene C. H. // J. Am. Chem. Soc. 1937. Vol. 59, N 7. P. 1186–1188.
- [4] Мишина Н. Е., Зильберман Б. Я., Кольцова Т. И. и др. // Радиохимия. 2014. Т. 56, N 3. С. 214–222.
- [5] Пузиков Е. А., Мишина Н. Е., Зильберман Б. Я. // Радиохимия. 2016. Т. 58, N 5. С. 409–414.
- [6] Erbacher O. // Ber. Deutsch. Chem. Ges. (Ser. A, B). 1930. Bd 63, Hf. 1. S. 141–156.
- [7] Кузнецов Р. А., Буткалюк П. С., Тарасов В. А. и др. // Радиохимия. 2012. Т. 54, N 4. С. 352–356.
- [8] Кузнецов Р. А., Буткалюк П. С., Буткалюк И. Л. и др. // Изв. Самар. науч. центра РАН. 2014. Т. 16, N 6. С. 129–135.
- [9] Программа для проведения ионометрического и потенциометрического титрования [электронный ресурс]. URL: <http://multitest.semico.ru/titr.htm> (04.10.2017).
- [10] Зинченко А. В., Изотова С. Г., Румянцев А. В. и др. Новый справочник химика и технолога. Химическое равновесие. Свойства растворов. СПб.: Профессионал, 2004. 998 с.
- [11] Кузнецов Р. А., Тарасов В. А., Романов Е. Г. и др. // Изв. Самар. науч. центра РАН. 2014. Т. 16, N 6. С. 136–141.
- [12] Nelson F. // J. Chromatogr. A. 1964. Vol. 16. P. 403–406.
- [13] Perry's Chemical Engineers' Handbook / Eds R. H. Perry, D. W. Green, J. O. Maloney. McGraw-Hill, 1997. 7th ed.
- [14] Дёрффель К. Статистика в аналитической химии / Пер. с нем. Л. Н. Петрова. М.: Мир, 1994. 268 с.