

904557

АЯД

Т - 35

На правах рукописи

ТЕРЕШАТОВ
Евгений Евгеньевич

ХИМИЧЕСКАЯ ИДЕНТИФИКАЦИЯ
СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
ПО ДОЛГОЖИВУЩИМ ИЗОТОПАМ ДУБНИЯ

Специальность: 05.17.02 — технология редких,
рассеянных и радиоактивных элементов

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата химических наук

Москва 2009

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы:

Синтез новых сверхтяжелых элементов (СТЭ) Периодической таблицы Д. И. Менделеева является на сегодня одной из важнейших фундаментальных проблем современной ядерной физики и радиохимии. Особый интерес вызывает вопрос о верхней границе существования ядер, о наличии одного или нескольких "островов стабильности" (магические числа протонов и нейтронов в ядре). Осуществленный в последние годы синтез новых элементов 112 – 116 и 118 впервые экспериментально подтвердил существование гипотетического "острова стабильности" СТЭ вблизи $Z = 114$, теоретически предсказанного еще в середине 60-х годов прошлого века. Предсказывается, что оболочки $Z = 120$ и $Z = 126$ также могут оказаться замкнутыми, т.е. магическими.

Относительно большие времена жизни изотопов новых элементов (от секунд до десятков часов) впервые открыли возможность определения не только их ядерно-физических характеристик, но и возможность постановки экспериментов по химической идентификации СТЭ.

Впервые синтез новых сверхтяжелых элементов 112 – 116 и 118 проведен в Лаборатории ядерных реакций имени Г. Н. Флерова (ОИЯИ) в реакциях полного слияния ^{48}Ca с ^{238}U (элемент 112), ^{237}Np (элемент 113), $^{242, 244}\text{Pu}$ (элемент 114), ^{243}Am (элемент 115), $^{245, 248}\text{Cm}$ (элемент 116) и ^{249}Cf (элемент 118). Сечения реакций с использованием дважды магического ядра в качестве бомбардирующей частицы приблизительно на 1 – 2 порядка выше соответствующих значений, наблюдаемых в иных реакциях синтеза. Такой подход позволил синтезировать новые относительно нейтронно-избыточные ядра и значительно продвинулись в исследовании свойств СТЭ и развитии теоретических моделей, описывающих и предсказывающих свойства ядер. Экспериментально наблюдаемые цепочки распадов новых нуклидов состояли из одного или нескольких последовательных α -распадов и заканчивались спонтанным делением. Идентификация новых нуклидов была основана на характеристиках их радиоактивного распада (энергия α -частиц, суммарная кинетическая энергия осколков спонтанного деления, время жизни, функция возбуждения). Определение атомного номера ка-

Работа выполнена в ГОУ ВПО "Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева" и в Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова Объединенного института ядерных исследований (г. Дубна).

Научные руководители: кандидат химических наук, доцент
Магомедбеков Эльдар Парпачевич
доктор физико-математических наук,
профессор Дмитриев Сергей Николаевич

Официальные оппоненты: доктор химических наук
Новиков Александр Павлович
кандидат химических наук
Философов Дмитрий Владимирович

Ведущая организация: ОАО "Высокотехнологичный научно-исследовательский институт неорганических материалов им. А. А. Бочвара"

Защита состоится "18" июня 2009 г. на заседании диссертационного совета Д 212.204.09 в РХТУ им. Д. И. Менделеева (125480 г. Москва, ул. Героев Панфиловцев, д. 20, корп. 1) в конференц-зале ИМСЭН-ИФХ в 15 часов.

С диссертацией можно ознакомиться в Информационно-библиотечном центре РХТУ им. Д. И. Менделеева.

Автореферат диссертации разослан " ____ " мая 2009 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д 212.204.09
кандидат технических наук

Растунова И. Л.

кого-либо из изотопов в наблюдаемых цепочках распада не только позволило бы надежно идентифицировать атомные номера всех ядер в цепочке, но явилось бы независимым подтверждением открытия нового элемента (элементов).

Изучение химических свойств трансактиноидных элементов позволяет оценить влияние релятивистских эффектов на поведение исследуемых элементов. Ряд квантово-химических расчетов указывает на значительные отклонения в поведении СТЭ, что может привести к нарушению тенденции изменения свойств элементов по группам или даже к проявлению свойств, характерных для представителей других групп. Экспериментально с учетом сечений образования СТЭ эти предположения могут быть изучены только в условиях работы с единичными атомами. При этом необходимо обеспечить очистку изучаемых элементов от тяжелых актиноидов, особенно от спонтанно делящихся изотопов этих элементов, которые могут являться источниками фоновых событий. Исходя из вышеизложенного, химическая идентификация сверхтяжелых элементов по долгоживущим изотопам дубния представляется актуальной.

Целью работы явилась:

- постановка экспериментов по подтверждению результатов химической идентификации цепочки распадов изотопа $^{288}115$ (синтезированного в реакции $^{48}\text{Ca} + ^{243}\text{Am}$) по конечному продукту распада, изотопу элемента 105 – дубний с массовым числом 268;
- разработка радиохимических методик, позволяющих в off-line экспериментах изучать химические свойства дубния с использованием наиболее долгоживущего (из известных на сегодняшний день) изотопа этого элемента – ^{268}Db .

Научная новизна:

1. Подтверждены результаты химической идентификации элемента 115 с массовым числом 288, синтезированного в реакции $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca}$, по его конечному продукту распада, изотопу ^{268}Db . Цепочка 5-ти последовательных α -распадов прерывалась спонтанным делением ^{268}Db . Зарегистрированы 5 событий спонтанного деления во фракциях элементов группы 5.

2. Впервые с использованием долгоживущего изотопа ^{268}Db проведено исследование химических свойств дубния в off-line режиме. В отдельных экспериментах показано, что в смешанных растворах минеральных кислот, содержащих HF, поведение Db отличается от поведения протактиния. При этом коэффициенты распределения дубния в системах $1,5 \text{ M HF}/3 \text{ M HNO}_3 - \text{Dowex } 1 \times 8$ и $1 \text{ M HF}/3 \text{ M HCl} - \text{МИБК}$ больше, чем аналогичные показатели ниобия.
3. По данным всех зарегистрированных на сегодня 23 событий спонтанного деления изотопа ^{268}Db оценено время его жизни, равное 28^{+11}_{-4} ч.

Практическая ценность работы:

1. Показана принципиальная возможность проведения химической идентификации цепочек распадов более далеких Z-нечетных элементов, в частности сверхтяжелых элементов с порядковыми номерами 117, 119, 121 и 123. Постановка химических экспериментов (имеющих преимущество по выходу изотопов СТЭ над физическими, использующими кинематические сепараторы) позволит надежно оценить сечения образования новых элементов при существенно меньших затратах на дорогостоящие сеансы работы ускорительной техники.
2. Разработанная радиохимическая методика позволяет в off-line режиме проводить выделение и изократическое разделение гомологов дубния, что открывает возможность проверить влияние релятивистских эффектов на поведение последнего, а также использовать фракцию элементов группы 5 для определения массы изотопа дубния с помощью массесепаратора.
3. Разработанные методики выделения и очистки ниобия и тантала могут представлять значительный практический интерес при разработке технологий металлов группы 5, а так же радиофармпрепаратов с использованием радионуклидов $^{90\text{m}}\text{Nb}$ и ^{178}Ta .

Апробация работы:

Материалы диссертационной работы докладывались и обсуждались на: семинарах Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова (ОИЯИ); Между-

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

народном симпозиуме по экзотическим ядрам "EXON-2006" (Ханты-Мансийск, 2006); Второй Российской молодежной школе по радиохимии и ядерным технологиям "Радиохимия" (Озерск, 2006); Пятой Российской конференции по радиохимии "Радиохимия-2006" (Дубна, 2006); Третьей международной конференции по химии и физике трансактиноидных элементов "TAN07" (Давос, Швейцария, 2007); Международной летней школе "Атомные свойства тяжелых элементов" (Виттенберг, Германия, 2008).

Публикации:

По теме диссертации опубликовано 10 работ, в том числе 3 – в ведущих рецензируемых научных журналах и изданиях, определенных Высшей аттестационной комиссией.

Структура и объем работы:

Диссертация состоит из введения, двух глав, выводов и списка литературы. Она содержит 133 страницы машинописного текста, включает в себя 74 рисунка, 22 таблицы и список литературы из 161 научной работы.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении приведены обоснование актуальности темы работы, постановка задачи научного исследования и методы ее решения.

В первой главе обобщены литературные данные о методах синтеза и способах идентификации новых нуклидов, влиянии релятивистских эффектов на свойства трансактиноидных элементов, и рассмотрены результаты on-line экспериментов по идентификации и изучению химических свойств дубния.

Во второй главе приведены экспериментальные результаты модельных опытов по выделению и разделению элементов группы 5, а также результаты изучения химических свойств дубния в off-line режиме.

В первом разделе описаны радиохимические методики получения безносительных количеств радионуклидов Nb, Ta и Pa в реакциях (α , xn) и (n, γ) на циклотроне У-200 и микротроне МТ-25 (ЛЯР, ОИЯИ). Характеристики и реакции получения изотопов элементов, используемых в настоящей работе, представлены в таблице 1.

Таблица 1

Ядерные свойства используемых в работе радионуклидов

Реакция получения	Изотоп	Энергия, кэВ (относительная интенсивность, %)		T _{1/2} , сут
^{nat} Y (α , xn)	^{91m} Nb	104,6 (0,5)	60,9	
		1204,8 (2,9)		
^{nat} Lu (α , xn)	¹⁷⁷ Ta	934,5 (99,0)	10,15	
		55,8 (41,8)	2,36	
		112,9 (7,2)		
²³² Th (n; γ) ²³³ Th $\xrightarrow{\beta^-}$	²³³ Pa	312,2 (38,6)	27,0	
²³⁷ Np $\xrightarrow{\alpha}$				

Для наработки радионуклидов ниобия и тантала на алюминевую подложку послойно наносили раствор нитрата иттрия (нитрата лютеция) с добавками этилового спирта и сахара. Подложки после нанесения каждого слоя прокаливали при температуре 300 – 350 °С. Образовавшийся оксид Y₂O₃ (Lu₂O₃) (толщина отдельного слоя составляла около 0,2 мг/см²) толщиной 10,0 – 13,0 мг/см² облучали α -частицами начальной энергией 32 – 33 МэВ на внутреннем пучке ускорителя У-200 (облучаемая поверхность мишени расположена под углом 14° к пучку) в течение 10 ч (6 ч) при среднем токе (⁴He⁺) 10 мкА (7 мкА). По окончании облучения подложку выдерживали в течение 2 – 4 сут для снижения уровня наведенной активности. Выходы радионуклидов составили 250 кБк/мкА·ч по ^{92m}Nb и 2 МБк/мкА·ч по ¹⁷⁷Ta.

Дальнейшее выделение целевых изотопов элементов проводилось с помощью экстракционных или осадительных методов. Методика получения в последнем случае позволяет проводить выделение элементов группы 5 приблизительно за 2 часа. Облученный слой оксида растворяли в 5 мл концентрированной HNO₃. Полученный раствор переносили в колбу для центрифугирования, где проводили нейтрализацию кислоты и осаждение Ln(OH)₃ концентрированным NH₄OH (25 – 30 мл). Элементы группы 5 соосаждались с гидроокисью. После этого колбу нагревали на водяной бане в течение 1 – 2 мин, а затем проводили центрифугирование в течение 10 мин при 4000 об/мин. После декантации осадок растворяли в 6 М HCl и повторяли операции осаждения, центрифугирования и декантации. Вновь полученный осадок растворяли в 6 М HCl и добавляли HF для осаждения YF₃ (LuF₃) так, чтобы конечный состав смеси соот-

ветствовал $\sim 0,5$ М НСl/ ~ 1 М НF. Указанное выше соотношение концентраций кислот выдерживали для минимального содержания солей в декантате. После этого проводили центрифугирование в течение 5 минут (4000 об/мин) и полученный после декантации раствор, содержащий более 80 % ниобия и тантала, упаривали досуха и переупаривали с царской водкой. Доочистку элементов проводили с помощью анионного обмена. Сухой остаток растворяли в 1 мл 1 М НF, наносили радионуклиды на колонку 6x10 мм со смолой Dowex 1x8 (200 – 400 меш) и десорбировали смешанным раствором 0,5 М ННО₃/1,5 % Н₂O₂.

Для наработки протактиния набор ториевых фольг различной толщины и общей массой 0,9 г помещали в цилиндрический пластмассовый контейнер и облучали тепловыми нейтронами с использованием U-Be конвертора микро-трона МТ-25 (поток нейтронов – 10^8 н/см²·с) в течение 10 ч. По окончании облучения фольги выдерживали в течение 3 суток и растворяли в 10 мл 11,3 М НСl с добавлением 1 – 2 капель 2 М НF (для улучшения растворения). Полученный раствор пропускали через анионообменную колонку 8x40 мм со смолой АG 1x8 (100 – 200 меш). После чего колонку промывали 9 мл 8 М НСl для удаления следов тория и элюировали Ра 6 мл 2 М НСl. Степень выделения Ра составила ~ 95 %.

Другим способом получения является многократное извлечение ²³³Ра (по мере его накопления) из материнского радионуклида ²³⁷Нр. В основе принципа лежит создание изотопного генератора с использованием сильнокислотного катионита и разбавленных растворов плавиковой кислоты в качестве элюента дочернего продукта.

Во втором разделе рассмотрены способы селективного выделения Nb и Та из многокомпонентных растворов.

В экспериментах по изучению поведения элементов групп 4 и 5 при лантанфторидном осаждении в смешанных НF/ННО₃ растворах обнаружено, что в широком диапазоне концентраций кислот (1 – 9 М) элементы группы 4 и протактиний практически полностью осаждаются, а элементы группы 5 (Nb и Та) – остаются в растворе (рис. 1а).

Последние достижения в области синтеза сверхтяжелых элементов на-

прямую связаны с использованием ⁴⁸Са в качестве бомбардирующей частицы.

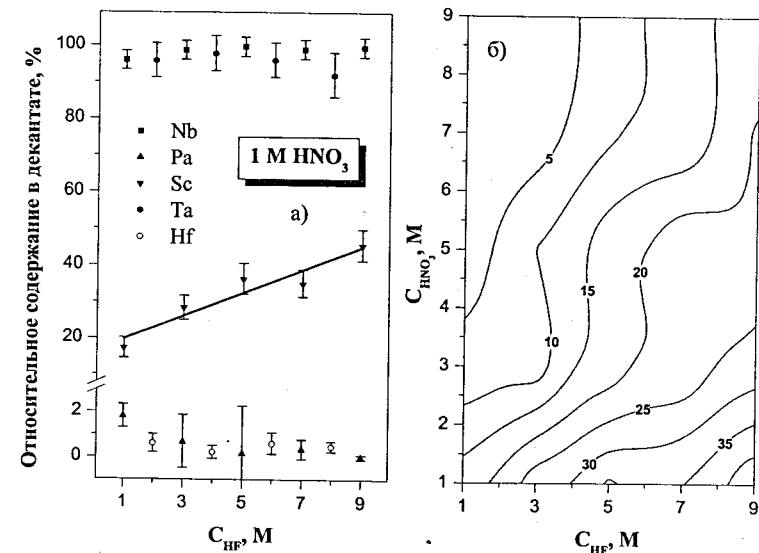


Рис. 1. Относительное содержание элементов в декантате при осаждении с LaF₃ из смешанных НF/ННО₃ растворов: а) Nb, Та, Ра, Нf и Sc, б) Sc

Поэтому любая методика, направленная на изучение химических свойств ТАЭ, должна учитывать присутствие в системе продуктов реакций передач, ⁴⁷, ⁴⁸Sc (β -излучатели мешают α -спектрометрии). На рисунке 1б показано, что относительное содержание скандия в декантате понижается с уменьшением концентрации НF и увеличением концентрации ННО₃.

В третьем разделе рассмотрены результаты модельных экспериментов по ионообменному и экстракционно-хроматографическому разделению элементов группы 5.

Одним из преимуществ катионного обмена в изучении химических свойств первых трансактиноидов является высокая степень очистки от актиноидных элементов. Катионообменные разделения элементов групп 4 и 5, а также редкоземельных элементов, проводили на колонке 6x30 мм со смолой Dowex 50x8 (100 – 200 меш). В этих экспериментах удалось отделить элементы групп 4 и 5 от актиноидов, в качестве гомологов которых использовался самый тяжелый лантаноид Lu. Помимо этого, в разделяемую смесь был внесен изотоп ^{87m}Sr,

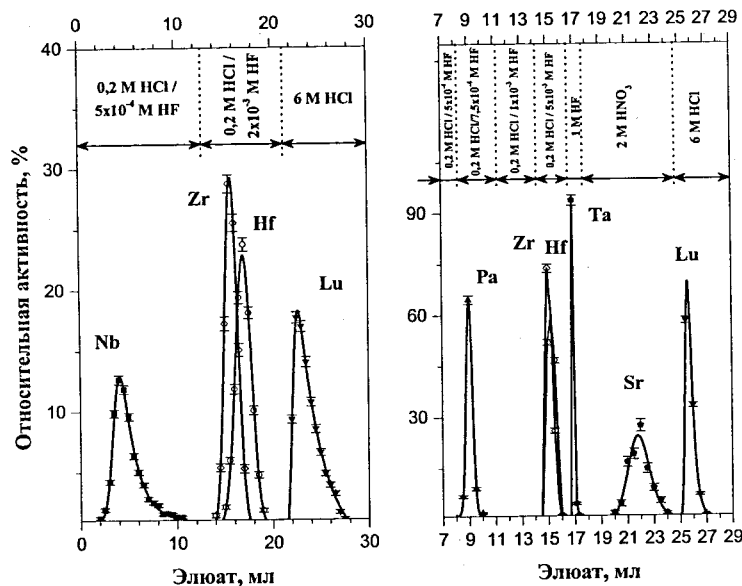


Рис. 2. Катионообменное разделение элементов группы 5 на колонке 6x30 мм со смолой Dowex 50x8 (100–200 меш)

являющийся по своему химическому поведению аналогом No, который может образоваться при распаде: $\text{Db} \xrightarrow{\alpha} \text{Rf} \xrightarrow{\alpha} \text{No}$. Таким образом, в случае образования No по указанной выше схеме, предлагаемая методика (рис. 2) позволяет осуществить полное отделение элементов групп 4 и 5 от Sr (аналог No), а также от Lu (аналог 3^x -валентных актиноидов).

Анионный обмен использовали при изучении химического поведения дубния в связи с образованием последним прочно сорбируемых фторидных комплексов. Однако из-за высоких значений коэффициентов распределения разделить элементы группы 5 в среде HF и получить небольшие по объему фракции каждого из них довольно сложно. Для разделения Pa и Nb использовали смешанные растворы HF/HCl и HF/HNO₃. Тантал в силу высоких значений коэффициентов распределения десорбировали раствором HNO₃/H₂O₂.

Особое место в изучении химических свойств сверхтяжелых элементов занимают экстракционно-хроматографические методы. В ходе модельных экспериментов в качестве инертного носителя использовали фторуглеродный полимер, на который наносили метилизобутилкетон (МИБК), элюенты – смешан-

ные HF содержащие растворы минеральных кислот.

Из рассмотренных систем наиболее удобной для применения можно считать HF/HCl. В этих условиях достигается прочное удерживание исследуемых элементов на колонке, в отличие от среды HF/HNO₃. В силу использования легко упариваемых минеральных кислот не возникает сложностей с приготовлением источников для спектрометрии, в то время как в среде HF/H₂SO₄ при упаривании образуется маслянистый остаток.

Таким образом, в третьем разделе предложены катионо-, анионообменные и экстракционно-хроматографические методики, позволяющие разделять элементы группы 5.

В четвертом разделе приведены результаты эксперимента по изучению химических свойств дубния, а также рассмотрены возможные схемы будущих экспериментов.

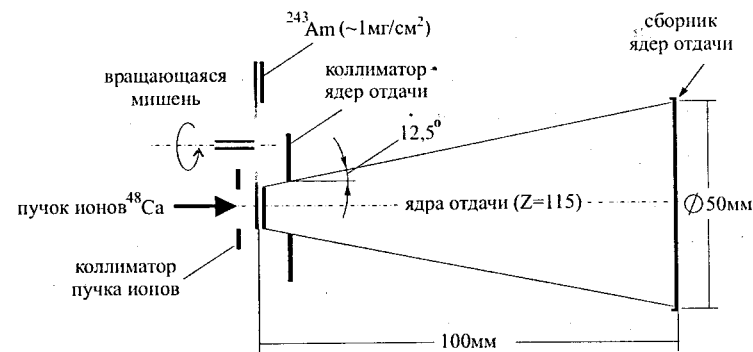


Рис. 3. Схема эксперимента по идентификации цепочки распада ²⁸⁸115

Эксперимент был выполнен на ускорителе тяжелых ионов У-400 ЛЯР. Принципиальная схема облучения показана на рисунке 3. Мишень в виде вращающегося диска из титановой фольги толщиной 1,5 мкм и общей площадью 32 см² с нанесенным на нее ²⁴³Am (99,9 %) в виде оксида толщиной 1,2 мг/см² (по ²⁴³Am) облучалась ионами ⁴⁸Ca с энергией 247 МэВ (энергия на середине слоя мишени). Ядра отдачи (продукты реакции, вылетающие из мишени) останавливались в медном сборнике. Сборник ядер отдачи диаметром 50 мм был установлен на расстоянии 100 мм от мишени по оси пучка. Пробег ядер отдачи в материале сборника не превышал 3–4 мкм.

Всего было проведено 8 экспериментов, время облучения в каждом из них составляло около 40 часов. По окончании облучения поверхность сборника тщательно очищали от аэрозольных частиц, содержащих ^{243}Am . Затем с помощью микрокарного станка механически срезали верхний слой толщиной 7 – 10 мкм (120 – 180 мг Cu). Медную стружку растворяли в 10 мл концентрированной HNO_3 . Очистку от балластного материала, меди, проводили с помощью $\text{La}(\text{OH})_3$ -осаждения в аммиачной среде (медь в виде аммиачного комплекса оставалась в растворе).

Далее были разработаны и реализованы две равноценные схемы, включающие в себя стадию LaF_3 -осаждения, что позволило удалить с осадком большую часть актиноидов, скандия, элементов группы 4 и протактиний. После чего декантат использовали либо для анионообменных, либо для экстракционно-хроматографических исследований.

При использовании анионного обмена (колонка 6x10 мм со смолой Dowex 1x8, 200 – 400 меш, F-форма) десорбцию ниобия и тантала проводили двумя разными способами. В первом случае – без разделения элементов – использовался раствор 0,5 М HNO_3 /1,5 % H_2O_2 , во втором – Nb элюировали смешанным раствором 3 М HNO_3 /1,5 М HF , а Ta – 0,5 М HNO_3 /1,5 % H_2O_2 . При экстракционно-хроматографическом методе декантат переносили в колонку с МИБК, предварительно промытую смешанным раствором 6 М HCl /6 М HF . Ниобий реэкстрагировали последовательно смешанными растворами 3 М HCl /1 М HF и 1,5 М HCl /0,5 М HF , после чего фракции объединяли. Тантал вымывали с помощью H_2O .

В трех экспериментах из фторидного осадка извлекали элементы группы 4. Для растворения LaF_3 к осадку добавляли H_3BO_3 (нас.) и HCl , затем осаждали гидроксид $\text{La}(\text{OH})_3$ с помощью NH_4OH . Осадок растворяли в 0,2 М HCl и подавали полученный раствор в колонку со смолой Dowex 50x8, где проводили очистку от 3^x-валентных лантаноидов и актиноидов в среде 0,2 М HCl /0,01 М HF .

Все образцы для измерений готовили путем нанесения соответствующих фракций элюата на подложку (полиэтиленовая пленка в виде диска диаметром 15 мм и толщиной 0,4 мкм) с последующим упариванием раствора досуха в

струе горячего гелия.



Рис. 4. Нейтронный детектор регистрирующий нейтроны спонтанного деления. Нейтронный детектор состоял из 72 ^3He -счетчиков в полиэтиленовом замедлителе, расположенных в три ряда на различном расстоянии от камер с образцами. Условия облучения (поток ионов ^{48}Ca в каждом цикле) и результаты измерений для каждого образца (энергия осколков спонтанного деления с учетом поглощения в толщине слоя источников и подложки; число нейтронов, зарегистрированных ^3He -счетчиками в каждом событии спонтанного деления, и время регистрации события от момента начала измерений) представлены в таблице 2.

Таблица 2

Условия и результаты эксперимента по изучению химических свойств дубния

№	Доза ионов ^{48}Ca	Энергия осколков деления E_1/E_2 , МэВ			Число нейтронов, в каждом событии СД	Время регистрации, ч	Химическая схема выделения и разделение гомологов
		Pa/Zr/Hf-фракция	Nb-фракция	Ta-фракция			
1	$5,2 \cdot 10^{17}$	нет СД	51/-		1	27	Анионный обмен
2	$4,2 \cdot 10^{17}$	нет СД	40/53		3	37	
3	$4,5 \cdot 10^{17}$	нет СД ¹	нет СД	22/3	6	30	Экстракционная хроматография
4	$4,2 \cdot 10^{17}$	–	нет СД	45/5	2	16	
5	$4,2 \cdot 10^{17}$	–	нет СД	нет СД	–	–	Анионный обмен
6	$3,9 \cdot 10^{17}$	–	нет СД	66/8	2	18	
7	$4,4 \cdot 10^{17}$	–	нет СД ¹	нет СД	–	–	
8	$4,4 \cdot 10^{17}$	–	нет СД	нет СД ²	–	–	

Измерения всех образцов проводились в течение 96 ч, если не указано иное.

¹ – измерения проводились в течение 48 ч.

² – измерялось два образца: один – в течение 48 ч, другой – 1152 ч.

В ходе эксперимента при суммарной дозе ионов ^{48}Ca равной $3,5 \cdot 10^{18}$ было зарегистрировано 5 событий спонтанного деления за временной интервал 37 ч с момента начала измерений. Все события обнаружены во фракциях элементов группы 5, дважды – во фракциях Nb/Ta (фракции получены без разделения элементов) и трижды – в Ta-фракции. Вероятность регистрации акта спонтанного деления тяжелого актиноида (продукта реакции передачи) не превышает $1 \cdot 10^{-3}$ СД/сут. Поскольку для разделения гомологов применялись две различные химические системы, нельзя исключать, что в ряду десорбции Nb > Ta дубний может оказаться как за Ta, так и между своими гомологами. С другой стороны можно констатировать, что Db в указанных условиях по своим химическим свойствам отличается от псевдогомолога Pa (на основании осаждения с LaF_3 и отсутствия событий спонтанного деления в образцах, полученных после обработки фторидного осадка). При этом коэффициенты распределения дубния в системах $1,5 \text{ M HF} / 3 \text{ M HNO}_3$ – Dowex 1x8 и $1 \text{ M HF} / 3 \text{ M HCl}$ – МИБК больше, чем аналогичные показатели ниобия. По данным всех зарегистрированных 23 событий спонтанного деления оценено время жизни изотопа ^{268}Db равное 28_{-4}^{+11} ч.

Эффективности выделения радионуклидов элементов групп 3 – 5 и 7, определенные по данным спектрометрических измерений рабочих образцов в первом эксперименте по химической идентификации дубния (I) и в проведенном (II), представлены в таблице 3. Содержание ^{175}Hf во фракции элементов группы 5 составило $1,7 \pm 0,14$ %, что соответствует коэффициенту разделения $K_{\text{разд}} (V_{\text{гр}}/IV_{\text{гр}}) = 59 \pm 5$. Эта величина определяется очисткой на стадии LaF_3 -

Таблица 3

Степень выделения радионуклидов, %

Изотоп	I		II			
	IV/V-фракция	LaF_3	IV-фракция	V-фракция	Nb-фракция	Ta-фракция
Nb-92m	80 ± 6	$1,3 \pm 0,9^*$	$0,37 \pm 0,14^*$	86 ± 10	84 ± 7	$0,11 \pm 0,04$
Ta-177	57 ± 32	–	–	93 ± 8	–	85 ± 4
Hf-175	64 ± 6	–	56 ± 11	$1,7 \pm 0,14$	–	$0,08 \pm 0,01$
Zr-89	53 ± 8	68 ± 9	52 ± 5	$0,5 \pm 0,2$	$0,4 \pm 0,2$	$0,07 \pm 0,03$
Sc-48	45 ± 6	76 ± 7	–	$0,14 \pm 0,05$	$0,10 \pm 0,03$	–
Y-87	$0,7 \pm 0,2$	84 ± 8	$0,38 \pm 0,06$	$0,7 \pm 0,2$	–	$0,06 \pm 0,01$
Rh-101m	5 ± 2	$4,4 \pm 0,8$	$0,3 \pm 0,1$	$0,14 \pm 0,07$	$0,51 \pm 0,09$	–

* – приведены значения по изотопу Nb-90

осаждения и хорошо согласуется с результатами модельных экспериментов. Содержание изотопов скандия во фракциях элементов группы 5 снижено почти в 300 раз по сравнению с данными эксперимента по идентификации дубния. Кроме этого коэффициент разделения тантала и ниобия (гафния) составил $K_{\text{разд}} (\text{Ta/Nb-Hf}) \geq 9 \cdot 10^2$, а коэффициент разделения элементов группы 5 и актиноидов – $K_{\text{разд}} (V_{\text{гр}}/\text{An}) \geq 7 \cdot 10^5$.

Возможность изократического разделения ниобия и тантала для опровержения или доказательства наличия инверсии свойств по группе представляется при использовании смешанных растворов HF/HNO₃. Однако применение такой системы не возможно без предварительной оптимизации процесса разделения.

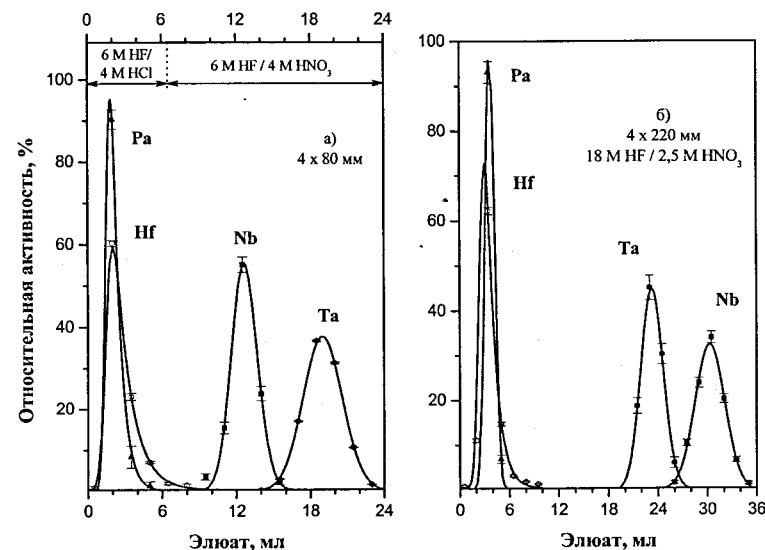


Рис. 5. Оптимальные условия разделения гомологов Db в среде HF/HNO₃ на колонках со смолой Dowex 1x4 (-400 меш) при скорости элюента 0,25 мл/мин

Относительно большие объемы фракций каждого элемента можно уменьшить, используя смолы меньшего зёрнения и с меньшим содержанием дивинилбензола. Улучшить степень разделения элементов можно за счет изменения геометрических параметров колонок. На рисунке 5 показано разделение Hf, Pa, Nb и Ta на колонках со смолой Dowex 1x4 (-400 меш). Коэффициенты разделения Nb и Ta составляют $\alpha_{\text{Ta/Nb}} \approx 2,2$ (рис. 5а) и $\alpha_{\text{Nb/Ta}} \approx 1,3$ (рис. 5б). Сум-

марный объем фракций ниобий-тантал составляет около 15 мл в обоих случаях. Наблюдаемые противоположные последовательности элюирования Nb и Ta указывают на дополнительное преимущество выбранной системы при изучении влияния релятивистских эффектов на химические свойства дубния.

На основании представленных данных предложена комбинированная схема проведения эксперимента по исследованию поведения долгоживущих изотопов дубния в растворах HF/HNO₃.

ВЫВОДЫ

1. Подтверждены результаты химической идентификации элемента 115 с массовым числом 288, синтезированного в реакции $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca}$, по его конечному продукту распада, изотопу дубния. Цепочка 5-ти последовательных α -распадов прерывалась спонтанным делением ^{268}Db . Зарегистрированы 5 событий спонтанного деления во фракциях элементов группы 5.
2. Показана принципиальная возможность проведения химической идентификации цепочек распадов более далеких элементов с порядковыми номерами 117, 119, 121 и 123. Постановка химических экспериментов (имеющих преимущество по выходу изотопов СТЭ над физическими, использующими кинематические сепараторы) позволит надежно оценить сечения образования новых элементов при существенно меньших затратах на дорогостоящие сеансы работы ускорительной техники.
3. Проведено первое химическое исследование свойств дубния в off-line режиме. С использованием долгоживущего изотопа ^{268}Db в отдельных экспериментах показано, что в смешанных растворах минеральных кислот, содержащих HF, поведение дубния отличается от поведения протактиния. При этом коэффициенты распределения дубния в системах 1,5 М HF/3 М HNO₃ – Dowex 1x8 и 1 М HF/3 М HCl – МИБК больше, чем аналогичные показатели ниобия.
4. По данным всех зарегистрированных на сегодня 23 событий спонтанного деления оценено время жизни изотопа ^{268}Db , равное 28_{-4}^{+11} ч.
5. Разработана радиохимическая методика выделения и изократического разделения гомологов дубния в off-line режиме. Показано, что в смешанных

растворах HF/HNO₃ наблюдаются противоположные последовательности элюирования ниобия и тантала. Применение этой методики позволит оценить влияние релятивистских эффектов на поведение дубния, а также использовать фракцию элементов группы 5 для определения массы изотопа дубния с помощью массесепаратора.

6. Разработанные методики выделения и очистки ниобия и тантала могут представлять значительный практический интерес при разработке технологий металлов группы 5, а так же радиофармпрепаратов с использованием радионуклидов $^{90\text{m}}\text{Nb}$ и ^{178}Ta .

Основное содержание диссертации изложено в следующих публикациях:

1. Stoyer N. J., Landrum J. H., Wilk P. A., Moody K. J., Kenneally J. M., Shaughnessy D. A., Stoyer M. A., Wild J. F., Loughheed R. W., Dmitriev S. N., Oganessian Yu. Ts., Shishkin S. V., Aksenov N. V., Tereshatov E. E., Bozhikov G. A., Vostokin G. K., Utyonkov V. K., Yeremin A. A. Chemical Identification of a Long-Lived Isotope of Dubnium, a Descendant of Element 115. // Nucl. Phys. A. 2007. V. 787. № 1-4. P. 388c – 395c;
2. Wilk P. A., Landrum J. H., Shaughnessy D. A., Kenneally J. M., Stoyer N. J., Stoyer M. A., Moody K. J., Aksenov N. V., Bozhikov G. A., Tereshatov E. E., Vostokin G. K., Shishkin S. V., Dmitriev S. N. Separation of group five elements by reversed-phase chromatography. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2008. V. 275. № 3. P. 651 – 657;
3. Терешатов Е. Е., Брухертзайфер Х., Божиков Г. А., Аксенов Н. В., Стародуб Г. Я., Востокин Г. К., Белов А. Г., Шишкин С. В., Дмитриев С. Н., Геггелер Х. В., Айхлер Р., Шуман Д. Катионообменное разделение элементов 5 группы - Модельные опыты по выделению и химической идентификации Db. // Радиохимия. 2008. Т. 50. № 3. С. 251 – 254.
4. Терешатов Е. Е., Брухертзайфер Х., Божиков Г. А., Аксенов Н. В., Шишкин С. В., Дмитриев С. Н. Ионнообменное разделение элементов VB группы. Модельные эксперименты по исследованию химического поведения дубния. // Пятая Российская конференция по радиохимии "Радиохимия-2006", Озерск, ФГУП ПО "Маяк": тезисы докладов, 2006, с. 87 – 88.

5. Bruchertseifer H., Schumann D., Eichler R., Gäggeler H. W., Tereshatov E. E., Aksenov N. V., Starodub G. Ya., Vostokin G. K., Bozhikov G. A., Ivanov P. I., Shishkin S. V., Dmitriev S. N. Radiochemical separation of group V elements in aqueous hydrofluoric acid solutions by cation exchange. // Paul Scherrer Institut, annual report 2005, Villigen CH-5232, 2006, p. 8;
6. Терешатов Е. Е., Божиков Г. А., Аксенов Н. В. Исследование химического поведения дубния. Радиохимическое разделение элементов VB группы. // Вторая Российская молодежная школа по радиохимии и ядерным технологиям, Озерск, ФГУП ПО "Маяк": тезисы докладов, 2006, с. 116 – 118;
7. Tereshatov E. E., Bruchertseifer H., Bozhikov G. A., Aksenov N. V., Shishkin S. V., Dmitriev S. N. Investigation of dubnium chemical behaviour. Ion exchange separation of group V elements. // The sixth international conference "Modern Problems of Nuclear Physics", Tashkent: book of abstracts, 2006, p. 289 – 290;
8. Bruchertseifer H., Gäggeler H. W., Tereshatov E. E., Aksenov N. V., Shishkin S. V., Bozhikov G. A., Vostokin G. K., Starodub G. Ya., Dmitriev S. N. Anion exchange separation of Pa, Nb and Ta in aqueous mineralic acid solutions. // Paul Scherrer Institut, annual report 2006, Villigen CH-5232, 2007, p. 8;
9. Tereshatov E. E., Bruchertseifer H., Bozhikov G. A., Aksenov N. V., Starodub G. Ya., Vostokin G. K., Shishkin S. V., Dmitriev S. N., Gäggeler H. W. Radiochemical separation of group 5 elements. Model experiments for investigation of dubnium chemical behaviour. // International Symposium on Exotic Nuclei "Exon - 2006", Melville, New York, AIP, conference proceedings, 2007, p. 247 – 251;
10. Терешатов Е. Е., Магомедбеков Э. П. Выделение и разделение элементов группы 5 в водных растворах, содержащих фтор-ионы. // Успехи в химии и химической технологии. 2008. Т. XXII. № 8. С. 7 – 9.

Получено 6 мая 2009 г.