

На правах рукописи



Рахимов Алимардон Восибович

**РАДИОХИМИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ПОЛУЧЕНИЯ
ВЫСОКОДИСПЕРСНОГО СЕЛЕНА-82 С НИЗКИМ СОДЕРЖАНИЕМ
РАДИОАКТИВНЫХ ПРИМЕСЕЙ И АНАЛИЗ МАТЕРИАЛОВ ДЛЯ
НИЗКОФОНОВЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ**

Специальность 1.4.13 - Радиохимия

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата химических наук

Дубна - 2022

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем имени В.П. Джеллепова
Объединённого института ядерных исследований

Научный руководитель **Философов Дмитрий Владимирович**, кандидат химических наук, начальник сектора Научно-экспериментального отдела ядерной спектроскопии и радиохимии ЛЯП ОИЯИ

Официальные оппоненты:
Милютин Виталий Витальевич, доктор химических наук, заведующий лабораторией хроматографии радиоактивных элементов ФГБУН Института физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН

Суханов Максим Викторович, кандидат химических наук, старший научный сотрудник Лаборатории химии высокочистых бескислородных стекол ФГБУН Института химии высокочистых веществ им. Г.Г. Девятовых РАН

Ведущая организация

Акционерное общество «**Радиевый институт имени В.Г. Хлопина**», г. Санкт-Петербург

Защита диссертации состоится 16 июня 2022 г. в 12⁰⁰ часов на заседании диссертационного совета 24.1.195.01 в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Ордена Ленина и Ордена Октябрьской Революции Институте геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского Российской академии наук (ГЕОХИ РАН) по адресу: 119991, г. Москва, ул. Косыгина, дом 19.

С диссертацией можно ознакомиться на сайте ГЕОХИ РАН http://intranet.geokhi.ru/Thesis/2022/Кандидатские/Диссертация_Рахимов_АВ.pdf и в библиотеке Института. Текст автореферата размещен на сайте ВАК при Минобрнауки РФ <https://vak.minobrnauki.gov.ru>

Автореферат диссертации разослан «__» _____ 2022 г.

Учёный секретарь
диссертационного совета 24.1.195.01,
кандидат химических наук



Е.А. Захарченко

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Работа посвящена получению и анализу веществ, используемых в качестве источника двойного бета-распада, а также материала нейтронной защиты при поиске частиц темной материи. Эти вещества должны отличаться ультрамалым содержанием радиоактивных примесей, поскольку снижение фона при поиске редких процессов является ключевым фактором успеха экспериментов. После открытия нейтринных осцилляций, подтвердивших ненулевую массу нейтрино, поиск безнейтринной моды двойного бета-распада ($0\nu2\beta$) приобрел особую актуальность для фундаментальной физики, поскольку позволяет экспериментально определить природу нейтрино (майорановская или дираковская). Если $0\nu2\beta$ мода распада возможна, то нейтрино – майорановская частица, это означает нейтрино тождественно своей собственной античастице. Поиск $0\nu2\beta$ моды распада позволяет экспериментально оценить границы «Стандартной модели», которая является основополагающей в современной физике и объясняет поведение большинства элементарных частиц.

Относительно большая энергия радиоактивного распада ^{82}Se ($E_{2\beta} = 2995$ кэВ) делает его одним из лучших кандидатов для поиска $0\nu2\beta$ моды распада, в частности, в международном низкофоновом эксперименте SuperNEMO (рис.1) [1-2].

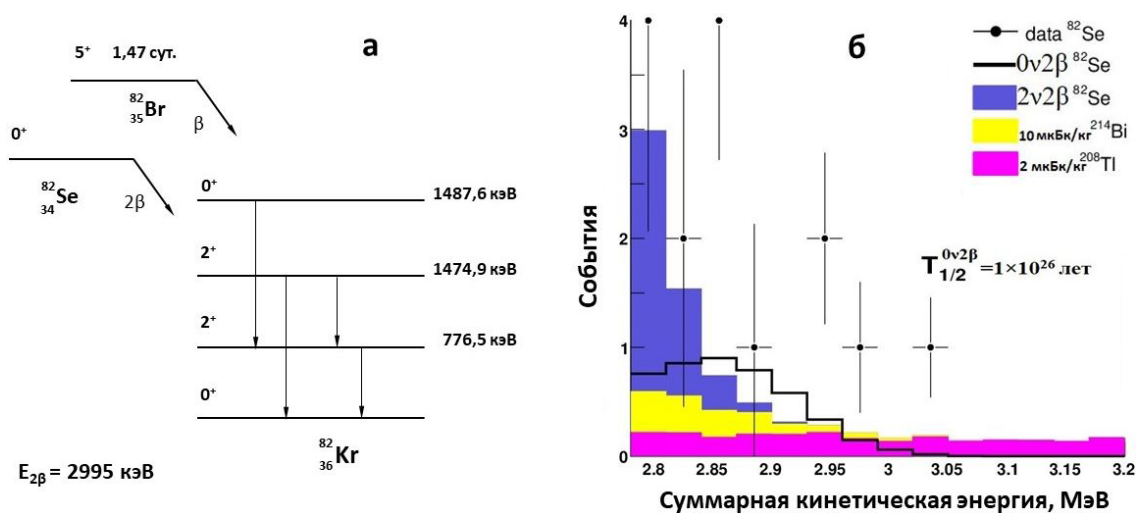


Рисунок 1. Схема 2β -распада ^{82}Se (а) [1]. Модельный энергетический спектр суммы двух электронов ожидаемый в SuperNEMO, $t_{\text{изм.}}(100 \text{ кг } ^{82}\text{Se}) - 5$ лет (б) [2]. Розовым и желтым цветами показан фон от ^{208}Tl и ^{214}Bi .

В эксперименте SuperNEMO-Демонстратор (первый модуль SuperNEMO) [3] в качестве объектов исследования используются тонкие фольги из изотопно-обогащенного ^{82}Se . Для успеха эксперимента SuperNEMO [4] необходимы килограммовые количества изотопно-обогащенного ^{82}Se с ультра низким содержанием радиоактивных примесей калия (^{40}K), радия (^{226}Ra), актиния (^{227}Ac), тория (^{232}Th) и урана (^{238}U). Наличие ^{232}Th (^{208}Tl) и ^{226}Ra (^{214}Bi) в фольгах может критично увеличивать фон (рис. 1), поэтому их содержание должно быть на уровне мкБк/кг. Изотопно-обогащенный ^{82}Se , как показали измерения в предыдущем эксперименте NEMO-3 [5], содержал радиоактивные примеси на уровне мБк/кг. Это диктует необходимость развития новых и высокоэффективных методов не только для очистки селена, но и всех этапов получения фольг изотопно-обогащенного ^{82}Se с уровнем радиоактивных примесей тория и радия порядка мкБк/кг, а по другим примесям (актиний, уран, калий, техногенные радионуклиды) по крайней мере уровня мБк/кг. Это также подразумевает определение содержания примесей на подобном уникальном уровне.

В международном низкофоновом эксперименте EDELWEISS [6] по поиску темной материи наиболее критичным является нейтронный фон, возникающий в процессах деления и в реакциях с альфа-частицами. В этом случае необходим тщательный отбор материалов с низким уровнем радиоактивных примесей прежде всего U и Th, что также предполагает отработку и развитие аналитических методов их определения в полиэтилене нейтронной защиты низкофоновой установки.

Цели диссертационной работы:

- получение высокодисперсной формы элементного селена-82 с низким содержанием радиоактивных примесей ^{40}K , ^{226}Ra , ^{227}Ac , ^{232}Th и ^{238}U ($< 0,7$ мБк/кг по ^{232}Th и ^{226}Ra – лучше, чем в NEMO-3) для использования его в виде фольг в низкофоновом эксперименте SuperNEMO.

- определение содержания природных радионуклидов ^{232}Th и ^{238}U в полиэтилене нейтронной защиты низкофоновой установки EDELWEISS.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Разработать методики получения радиоактивных индикаторов ^{223}Ra , ^{225}Ac и ^{230}U , основанные на их хроматографическом выделении из ториевой мишени,

облученной протонами с энергией около 300 МэВ, для последующего проведения модельных исследований по очистке селена.

2. Используя метод радиоактивных индикаторов определить коэффициенты распределения Th, U, Ra, Ac, ряда техногенных радионуклидов, таких как цезия (аналог калия), кобальта и редкоземельных элементов (Y, Ce, Pm, Tm, Yb, Lu) на катионите Dowex 50W×8 (200-400 меш) в растворах селенистой кислоты (H_2SeO_3).

3. Провести анализ химических реактивов, а также полиэтилена нейтронной защиты низкофоновой установки EDELWEISS на содержание тория и урана.

4. Разработать способ реверсной катионообменной хроматографической очистки селена от примесных радионуклидов при их вымывании в направлении, обратном элюированию продукта. Отработать методики получения высокодисперсной формы элементного селена, восстанавливая последний с помощью диоксида серы.

5. Провести очистку и кондиционирование (восстановление, отделение от жидкой фазы, гомогенизация, промывка, сушка в вакууме и др.) изотопно-обогащенного ^{82}Se в килограммовых количествах.

6. Провести анализ образцов селена для определения содержания примесей с помощью атомно-эмиссионной спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (АЭС-ИСП) и масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (МС-ИСП). Определить удельные активности образцов селена на низкофоновом детекторе из сверхчистого германия [7] и на $BiPo-3$ спектрометре (спектрометр для измерения бета-альфа совпадений при радиоактивном распаде примесей $^{214/212}Bi$ и $^{214/212}Po$ в тонких фольгах [8]).

Научная новизна работы:

1. Разработан способ реверсной катионообменной хроматографической очистки селена от примесных радионуклидов при их вымывании в направлении обратном элюированию продукта.

2. Разработан метод получения (хроматография, восстановление селенистой кислоты с помощью диоксида серы, центрифугирование, гомогенизация, промывка и вакуумная сушка) высокодисперсной формы элементного ^{82}Se , обеспечивающий минимизацию непосредственного контакта селеносодержащих фаз с атмосферой и

поверхностями реакционных и технологических сосудов. Измерения на ViPo-3 спектрометре фольг, приготовленных из полученного селена, показали их уникально высокую чистоту по ^{232}Th (22-150 мкБк/кг) и ^{226}Ra (< 600 мкБк/кг), которая ранее для высокодисперсного элементного селена не была достигнута.

3. Разработана оригинальная методика выделения широкого спектра радионуклидов, образующихся при облучении тория протонами, с помощью анионообменной колонки со смолой AG-1 \times 8 (100-200 меш) с последующим их разделением на катионообменной колонке со смолой AG-50 \times 8 (- 400 меш).

4. Впервые определены коэффициенты распределения Th, U, Ra, Ac, ряда техногенных радионуклидов, таких как цезия (аналог калия), кобальта и редкоземельных элементов (Y, Ce, Pm, Tm, Yb, Lu) на катионообменной смоле Dowex 50W \times 8 (200-400 меш) в растворах селенистой кислоты в диапазоне концентраций 0,5-4 моль/л.

Практическая значимость работы:

1. Разработан способ реверсной катионообменной хроматографической очистки селена от примесных радионуклидов при их вымывании в направлении обратном элюированию продукта. Разработанный способ удовлетворяет требованиям низкофоновых экспериментов и может быть использован для эффективной очистки и других веществ (например, ^{76}Ge , ^{130}Te), используемых в подобных экспериментах.

2. Приготовленные фольги из очищенного и кондиционированного 2,5 кг ^{82}Se установлены в SuperNEMO-Демонстратор для поиска $0\nu 2\beta$ -распада.

3. Полученные сведения по содержанию ^{232}Th и ^{238}U (10^2 - 10^3 мкБк/кг) в образцах полиэтилена позволили уточнить модель фона установки EDELWEISS-3.

Достоверность полученных результатов диссертационной работы обеспечена использованием современных инструментальных методов анализа веществ, основанных на разных принципах, в том числе инструментального нейтронно-активационного анализа (ИНАА), АЭС-ИСП, МС-ИСП, низкофоновой гамма-спектрометрии и ViPo-3 спектрометрии, а также статистически обоснованной воспроизводимостью результатов как в случае изотопно-обогащенного ^{82}Se , так и

природного селена. Для обработки результатов применяли стандартные подходы и методы.

Апробация работы: Основные результаты работы были доложены на VI Всероссийской конференции молодых ученых, аспирантов и студентов с международным участием «Менделеев-2012» (Санкт-Петербург, 2012); объединённой конференции: VI Евразийская конференция «Ядерная наука и ее применение» и VIII Международная конференция «Современные проблемы ядерной физики и ядерные технологии»; (Самарканд, 2012); IX международной конференции «Ядерная и радиационная физика (г. Алматы, 2013)»; VIII Всероссийской конференции по радиохимии «Радиохимия-2015» (г. Железногорск, 2015); V ежегодной конференции молодых ученых и специалистов «Алушта-2016» (г. Алушта, 2016); VII Российской молодежной школе по радиохимии и ядерным технологиям (г. Озерск, 2016); 47 - программно-консультативном комитете (ПКК ОИЯИ) по ядерной физике (г. Дубна, 2017); VI Всероссийском симпозиуме «Разделение и концентрирование в аналитической химии и радиохимии» с международным участием (г. Краснодар, 2021 г.).

По теме диссертационной работы опубликовано 11 научных работ: 4 статьи в рецензируемых научных журналах, 2 препринта ОИЯИ и 5 тезиса докладов в сборниках научных трудов конференций.

Личный вклад автора состоит в: поиске и анализе литературы по тематике исследований; планировании исследований; проведении экспериментальных работ, в том числе, создании и оснащении оборудованием чистой комнаты; разработке, а также реализации методик очистки и кондиционирования селена; участии в работах по получению радионуклидов из ториевой мишени, а также по определению коэффициентов распределения радионуклидов на катионите в растворах селенистой кислоты; проведении аналитических исследований образцов селена, химических реактивов, полимерных материалов; обсуждении полученных результатов; подготовке публикаций по выполненной работе.

Аналитические исследования образцов химических реактивов, полимерных материалов и селена выполнены совместно с сотрудниками ИЯФ АН РУз (г. Ташкент) и АСИЦ ИПТМ РАН (г. Черноголовка). Приготовление фольг из

очищенного и кондиционированного изотопно-обогащённого ^{82}Se , спектрометрические исследования образцов на низкофоновых HPGe-детекторе и на ВiРо-3 спектрометре выполнены совместно с сотрудниками ряда лабораторий участников коллаборации SuperNEMO.

Структура и объем диссертационной работы: диссертационная работа состоит из введения, четырёх глав, заключения и списка использованной литературы. Полный объем диссертации составляет 126 страниц, включая 26 таблицы и 33 рисунка. Список литературы содержит 182 наименования.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** отражены актуальность исследований, их научная новизна и практическая значимость, сформулирована цель работы и очерчен круг задач, которые необходимо было решить для достижения поставленных целей.

В **первой главе** представлен литературный обзор источников фона при проведении ядерно-физических низкофоновых экспериментов, дан краткий обзор экспериментов NEMO-3/SuperNEMO и EDELWEISS. Обсуждены метод радиоактивных индикаторов, основные моменты для разработки методики очистки селена, а также методики выделения радионуклидов из мишени тория, облученного протонами. Сделан краткий обзор по физико-химическим свойствам селена и его соединений. Рассмотрены работы по методам получения и анализа селена, используемого в различных областях науки и техники, в том числе для низкофоновых исследований.

В результате измерения фольг изотопно-обогащенного ^{82}Se в эксперименте NEMO-3 [5] был уточнен период полураспада ^{82}Se по двухнейтринной моде двойного бета-распада ($2\nu 2\beta$). Период полураспада ^{82}Se по моде $2\nu 2\beta$ составил $T_{1/2} = [(9,38 \pm 0,17 \text{ (стат.)} \pm 0,58 \text{ (сист.)}] \times 10^{19}$ лет, откуда собственная расчетная удельная активность ^{82}Se составляет 1,72 мБк/кг. Учитывая характеристики, заявленные в SuperNEMO по содержанию ^{208}Tl (<2 мБк/кг) и ^{214}Bi (<10 мБк/кг) [4], подобный уровень концентраций радиоактивных примесей (<1 мБк/кг) является ультрамалым. При этом ранее измеренные в NEMO-3 [5] образцы изотопно-обогащенного ^{82}Se содержали радиоактивные примеси на уровне мБк/кг (табл. 1).

Во **второй главе** описаны методики получения радионуклидов из ториевой мишени, а также исследование сорбции ряда элементов на катионообменной смоле в растворах селенистой кислоты.

Таблица 1. Удельные активности (мБк/кг) примесей радионуклидов в фольгах изотопно-обогащенного ^{82}Se , измеренные в NEMO-3 [5]. * - 0,39 мБк/кг ^{208}Tl соответствует 1,08 мБк/кг ^{232}Th .

Образец фольги	Удельные активности (мБк/кг) примесей радионуклидов			
	^{40}K	$^{208}\text{Tl}^*$	^{214}Bi	$^{234\text{m}}\text{Pa}$
Обогащенный ^{82}Se	$58,7 \pm 0,1$	$0,39 \pm 0,01$	$1,50 \pm 0,04$	$17,3 \pm 0,1$

Первый раздел посвящен получению ^{223}Ra , ^{225}Ac и ^{230}U , а также других радионуклидов из ториевой мишени, облученной протонами с энергией 300 МэВ. Полученные радионуклиды были использованы в качестве индикаторов при разработке методики очистки селена от других элементов. Методика выделения основана на отделении сначала широкого круга радионуклидов от тория (1-й этап) на анионообменной колонке, заполненной смолой AG-1×8 (100-200 меш), в азотнокислом растворе. На втором этапе проводили многоэлементное групповое хроматографическое разделение элементов (группа Nb-Ru-Sb-Te, рубидий, группа Ag-Cs-Be, кадмий, группа Bi-Sr-Sn, группа Ba-Ra, индий, группа Y-Ce-Ac, цирконий и торий) на колонке, заполненной смолой AG-50×8 (- 400 меш).

Полученную после анионитной хроматографии ториевой мишени фракцию ^{230}Pa использовали для получения ^{230}U . Фракцию протактиния доочищали на катионитной колонке со смолой Dowex 50W×8 (100-200 меш) в солянокислой среде (0,2 моль/л) с добавкой плавиковой кислоты (5×10^{-4} моль/л). После выдержки от протактиния отделяли радионуклид ^{230}U на колонке, заполненной анионитной колонке со смолой AG-1×8 (200-400 меш), в азотнокислой среде (10 моль/л).

Во *втором разделе* описывается экспериментальное определение коэффициентов распределения (K_D) ^{223}Ra , ^{225}Ac , ^{234}Th , ^{230}U , ^{137}Cs (химический аналог калия), ^{60}Co (рис. 3), а также ^{88}Y , ^{139}Ce , ^{143}Pm , ^{167}Tm , ^{169}Yb и ^{173}Lu на катионообменной смоле Dowex 50W×8 (200-400 меш) в растворах селенистой кислоты (H_2SeO_3) в диапазоне концентраций 0,5-4 моль/л.

Определение коэффициентов распределения осуществляли статическим методом с использованием радиоактивных индикаторов. Радионуклиды ^{88}Y , ^{139}Ce , ^{143}Pm , ^{167}Tm , ^{169}Yb , ^{173}Lu получали из танталовой мишеней, облученной протонами с энергией 660 МэВ. ^{60}Co и ^{137}Cs имели коммерческое происхождение. ^{234}Th был получен из естественного урана (^{238}U). Из рисунка 3 видно, что максимальный коэффициент распределения урана относительно невысок ($K_D = 130$ при концентрации селенистой кислоты 0,5 моль/л), но достаточен для отделения от селена. Значения коэффициентов распределения Y, Ce, Pm, Tm, Yb и Lu превышают 10^4 . Система катионит – раствор селенистой кислоты оказалась селективна для выделения тория и урана.

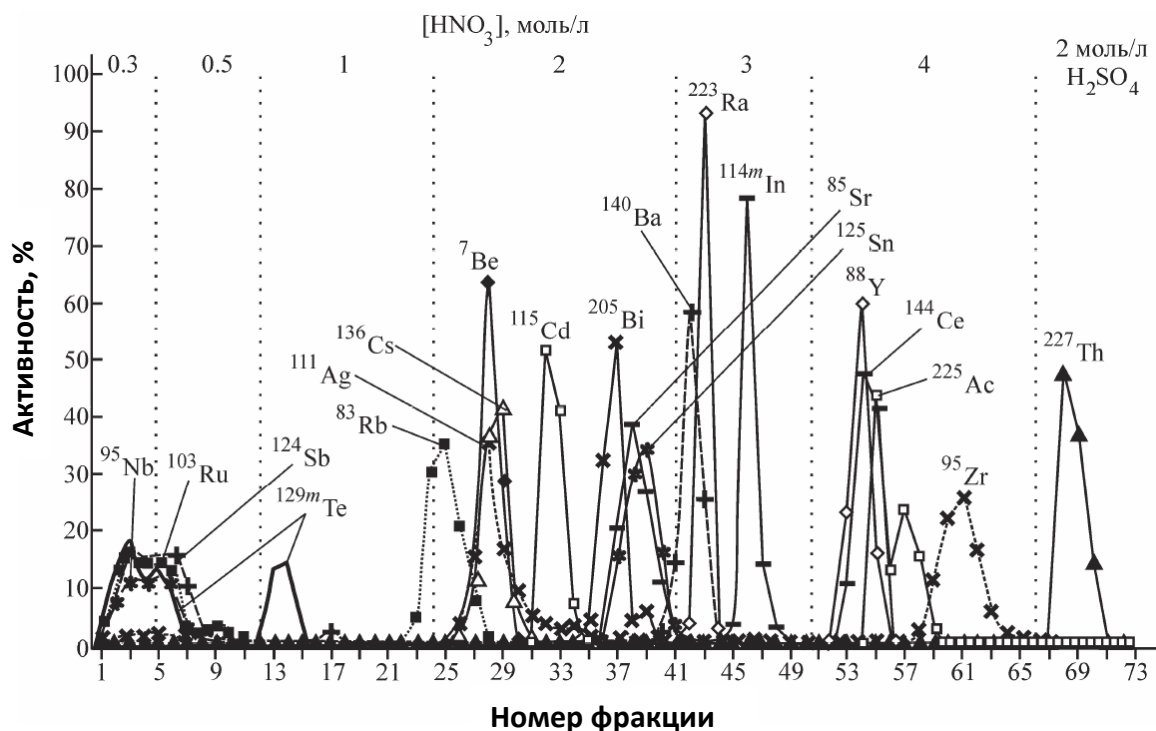


Рисунок 2. Хроматограмма разделения радионуклидов на катионитной колонке (длина - 230 мм, диаметр - 7 мм, AG-50×8, - 400 меш). Объем фракции 4 мл.

Выполнена оценка механизма взаимодействия элементов с селенистой кислотой по тангенсу угла наклона зависимостей $\lg K_D$ от логарифма концентрации селенистой кислоты (табл. 2), для сравнения приводятся тангенсы угла наклона для зависимостей $\lg K_D - \lg C(\text{HNO}_3)$. Коэффициенты распределения ионов в азотной кислоте взяты из работы [9]. Исходя из значения тангенса угла наклона цезия (больше 1), а также из зависимости сорбции Ra, Ac, и, особенно, U от концентрации

селенистой кислоты (рис. 3б) и в присутствии 0,5 моль/л HNO₃ можно сделать вывод, что недиссоциированная форма селенистой кислоты хорошо сольватирует катионы в растворе. Возможно, и анионные формы селенистой кислоты могут образовывать комплексы с катионами, в нашем случае, особенно, с уранил ионом.

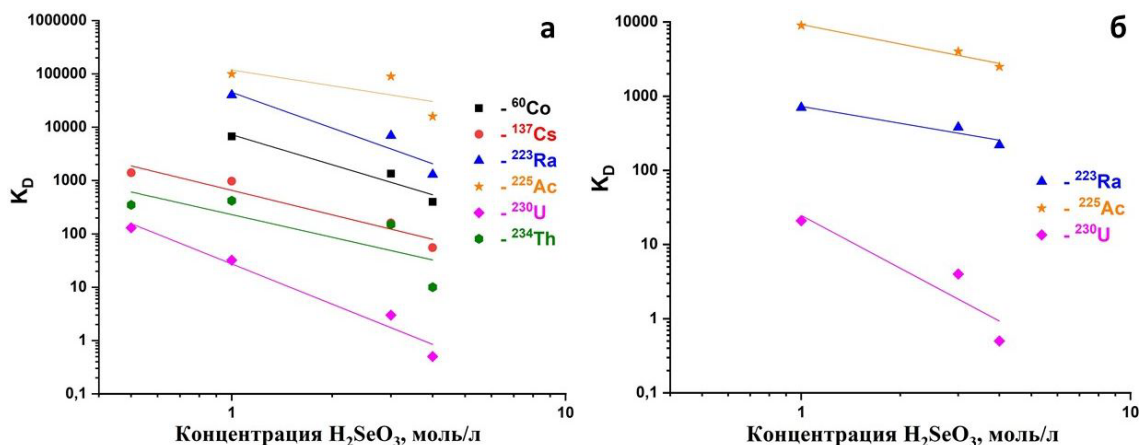


Рисунок 3. Коэффициенты распределения ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ²²³Ra, ²²⁵Ac, ²³⁰U и ²³⁴Th на катионообменной смоле Dowex 50W×8 (200-400 меш) при различных концентрациях селенистой кислоты в растворах. В случае ²²³Ra, ²²⁵Ac, ²³⁰U и ²³⁴Th в растворы добавлена HNO₃ до концентрации 0,01 моль/л (рис. а). Рисунок б - в растворы добавлена HNO₃ до концентрации 0,5 моль/л.

Таблица 2. Значения тангенса угла наклона логарифмической зависимости коэффициентов распределения ряда элементов на катионите от логарифмов концентрации кислот. * - приведены значения тангенса угла наклона для Ba и La (аналоги Ra и Ac). Подчеркнутые значения обозначают что однопараметрическая модель не совсем хорошо подходит для описания зависимости.

Среда	Ось абсцисс (аргумент)	Значения тангенса угла наклона					
		Co	Cs	Ra	Ac	U	Th
H ₂ SeO ₃ ,	lgC(H ₂ SeO ₃)	-1,9	-1,5	-2,2	<u>-1,0</u>	-2,5	<u>-1,4</u>
H ₂ SeO ₃ + HNO ₃ (0,01 моль/л)	lg√C(H ₂ SeO ₃)	-3,8	-3,0	-4,4	<u>-2,0</u>	-5,0	<u>-2,8</u>
H ₂ SeO ₃ + HNO ₃ (0,5 моль/л)	lgC(H ₂ SeO ₃)	-	-	-0,7	-0,9	-2,4	-
HNO ₃ [9]	lgC(HNO ₃)	-1,5	-1,0	-2*	-2,6*	-1,3	-2,8

В третьей главе описаны методики и результаты определения содержания примесей в химических реактивах и полимерных материалах.

Первый раздел посвящен химическому анализу бидистиллированной воды (лабораторная), азотной кислоты (компания «Химмед, «ОСЧ 18-4», ГОСТ 11125-84) и изопропилового спирта (компания «Компонент-реактив», «ОСЧ», СТП ТУ СОМР 2-018-06), используемых в процессе очистки и кондиционирования селена, на содержание примесей К, Th и U. Определение содержания примесей в образцах бидистиллированной воды и азотной кислоты проводили при помощи ИНАА (упаривали по 20 л воды и 0,5 л кислоты, сухие остатки облучали). Разбавленный раствор изопропилового спирта подкисляли 1%-ным раствором азотной кислоты и измеряли при помощи методов АЭС-ИСП (примесь калия) и МС-ИСП (примеси тория и урана) (табл. 3). Установлено, что нижний предел обнаружения по содержанию упомянутых элементов в воде и азотной кислоте, либо в изопропиловом спирте, сравним с целевыми уровнями содержания примесей в селене. Определенные уровни содержания К, Th и U позволили сделать вывод о возможности использования исследованных реактивов для разработки методики очистки и кондиционирования селена.

Таблица 3. Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов ^{40}K , ^{232}Th и ^{238}U в образцах химических реактивов. Массовое содержание (г/г), определенное методами ИНАА, АЭС-ИСП и МС-ИСП, переведено в мкБк/кг. (<) - означает, что указаны значения предела обнаружения (ПО). Доверительная вероятность - 90%.

Примеси радионуклидов	Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов		
	ИНАА		АЭС-ИСП и МС-ИСП
	Вода	Азотная кислота	Изопропиловый спирт
^{40}K	140 ± 6	< 2300	37 ± 4
^{232}Th	$< 1,9$	< 290	$0,3 \pm 0,1$
^{238}U	$< 2,1$	< 310	$1,7 \pm 0,2$

Так же следует отметить два фактора уменьшающих влияние примесей из реактивов. 1) При хроматографической очистке на катионите Dowex 50W×8 катионы примесей имеют высокие коэффициенты распределения. 2) При восстановлении селена из раствора селенистой кислоты происходит

дополнительная очистка от всех примесей, как, впрочем, и при промывке, так как все принципиальные примеси являются очень активными металлами.

Второй раздел посвящен оценке содержания примесей в образцах полимерных материалов используемой химической посуды и хроматографической колонки, а также полиэтилена, использованного в качестве нейтронной защиты в установке низкофонового эксперимента EDELWEISS.

В первом подразделе приведены результаты ИНАА образцов полимерных материалов химической посуды и изготовленной нами хроматографической колонки. Эти образцы – ПЭЭК (полиэфирэфиркетон – материал колонки), полипропилен (материал химических стаканов, бутылей и центрифужного сосуда) и политетрафторэтилен. В целом, обнаруженный уровень примесей (порядка мБк/кг) химической посуды, приемлем при ее промывке и многократном использовании. Результаты анализа приведены в соответствующем разделе диссертационной работы.

Во втором подразделе приведены результаты ИНАА образцов полиэтилена (табл. 4) нейтронной защиты (полиэтилен высокой плотности) установки EDELWEISS (основная внешняя защита) и EDELWEISS-3 (дополнительная внутренняя защита вокруг криостата). Как видно из таблицы 4, содержание ^{232}Th и ^{238}U в образцах дополнительной защиты составило порядка 10^2 - 10^3 мкБк/кг, на основании этих данных усовершенствована модель фона установки EDELWEISS-3.

Таблица 4. Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов ^{40}K , ^{232}Th и ^{238}U в образцах полиэтилена, используемых в экспериментах EDELWEISS и EDELWEISS-3. Массовое содержание (г/г), определенное методом ИНАА, переведено в мкБк/кг. (<) - означает, что указаны значения ПО. Доверительная вероятность - 90%.

Примеси радионуклидов	Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов			
	Основная защита		Дополнительная защита	
^{40}K	4900 ± 1100	3190 ± 770	29000 ± 3500	11500 ± 1600
^{232}Th	473 ± 12	342 ± 7	< 216	< 41
^{238}U	16500 ± 5200	10200 ± 1400	660 ± 310	950 ± 490

Четвертая глава посвящена разработке методики очистки и кондиционирования селена, а также его химико-аналитическим исследованиям.

Предложенный нами способ очистки и кондиционирования селена основан на:

- применении способа реверсной катионообменной хроматографической очистки селена от примесных радионуклидов при их вымывании в направлении обратном элюированию продукта;
- использовании всего лишь трех химических реактивов: бидистиллированная вода, азотная кислота и изопропиловый спирт высокой чистоты;
- применении диоксида серы высокой чистоты (компания «ООО Гранат-Е, ГОСТ 2918-79, чистота - 99,9%), как восстановителя для получения элементного селена.

Все этапы методики очистки и кондиционирования проводили в специально созданной «чистой комнате». Методика состоит из шести основных процедур: приготовление исходного раствора селенистой кислоты (0,5 моль/л, 5 л); хроматографическое разделение (очистка); восстановление селенистой кислоты с помощью диоксида серы (SO₂); отделение селена от жидкой фазы с использованием центрифугирования, промывка водой и спиртом; гомогенизация, промывка спиртом; вакуумная сушка.

Первый раздел посвящен разработке методики очистки селена. Методика основывается на экспериментально доказанной хорошей сорбции Cs, Co, Ra, Ac, Th и U на катионите в растворах селенистой кислоты (рис. 3).

Первый подраздел посвящен оценке качества хроматографической очистки селена с помощью модели Глюкауфа. Для расчета формы кривой элюирования (хроматограммы) использовали следующее уравнение:

$$C_{V_{эл}} = C_{max} \cdot e^{-\frac{N \cdot (V_{max} - V_{эл})^2}{2 \cdot V_{эл} \cdot V_{max}}} \quad (1).$$

Здесь $C_{V_{эл}}$, C_{max} – текущая и максимальная концентрации вещества в элюате, соответственно, N – число теоретических тарелок, V_{max} – объем элюата, отвечающий максимуму кривой элюирования, $V_{эл}$ – текущий объем элюата.

В нашем случае очистка селенистой кислоты на колонке от примесей больше соответствует фронтальному способу хроматографии. Формально объем до проскока в единицах свободного объема (V_0) равен K_D примеси плюс 1 с точностью

до коэффициента, учитывающего заполнение колонки смолой. Однако еще раньше в очищаемые фракции начнёт поступать примесь из-за уширения хроматографического пика. Такое уширение можно оценить и из переднего фронта кривой элюирования, рассчитанного по модели Глюкауфа.

Расчеты проводили для большой колонки (длина - 500 мм, диаметр - 28 мм), хроматограммы приведены в единицах V_0 . Наиболее легко элюируемым катионом в растворе селенистой кислоты является уран, имеющий в 0,5 моль/л растворе кислоты коэффициент распределения равный 130. Из рисунка 4а хорошо видно, что для смолы Dowex 50W×8 фракционного состава 200–400 меш (для более крупных смол также) раствор селенистой кислоты в объеме порядка $35V_0$ будет практически полностью очищен от следов урана.

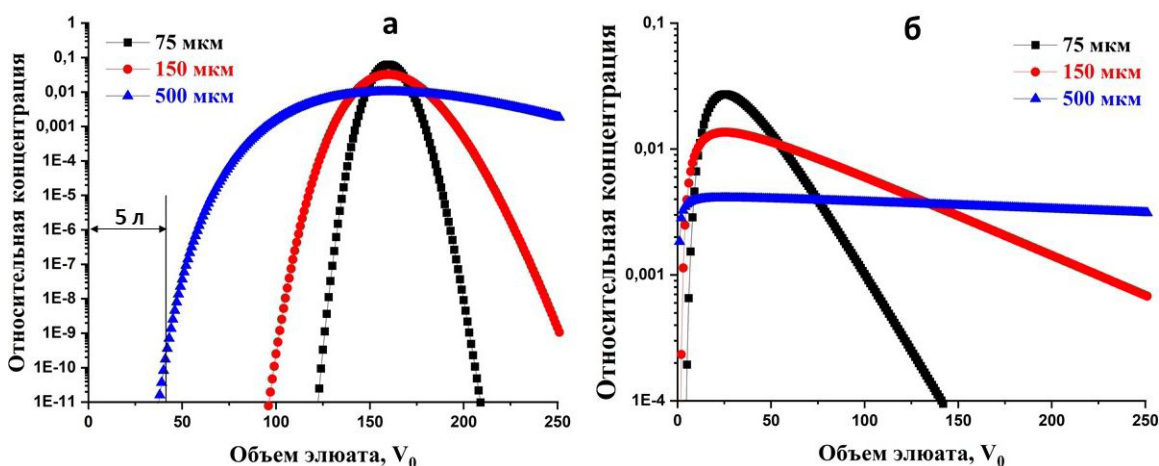


Рисунок 4. Хроматограммы элюирования U 0,5 моль/л раствором H_2SeO_3 (а) и элюирования Th раствором 5 моль/л HNO_3 (б), рассчитанные по модели Глюкауфа. Длина колонки - 500 мм, диаметр - 28 мм. Объем пропускаемой через колонку селенистой кислоты составлял $\sim 35V_0 = 5$ л. $K_D(U) = 130$, $K_D(Th) = 20$, $V_0 = 140$ мл. Средний диаметр зерен катионообменной смолы Dowex 50W×8 – 75 мкм, 150 мкм и 500 мкм.

Из рисунка 4б видно, что основная часть тория (наиболее трудно элюируемый катион в растворе азотной кислоты) может быть смыта с колонки заполненной Dowex 50W×8 раствором 5 моль/л HNO_3 ($43V_0$). Смывать элементы-примеси из колонки эффективнее в обратном направлении, особенно учитывая возможные локальные уплотнения смолы и сорбцию примесей стенками колонки. При этом,

несмотря на периодический характер проведения процесса, конечный продукт всегда элюируется с «чистой» стороны колонки.

Второй подраздел посвящен хроматографической очистке природного селена для отработки всех этапов методики. Очистку селена производили для двух колонок, эти разделения отличаются только объемами пропускаемых растворов.

Природный селен 100 г (селен технический – марка СТ-1, ГОСТ 10298-2018) растворяли в азотной кислоте ($\text{Se} + 4\text{HNO}_3 \rightarrow \text{H}_2\text{SeO}_3 + 4\text{NO}_2\uparrow + \text{H}_2\text{O}$), затем раствор упаривали досуха до образования SeO_2 ($\text{H}_2\text{SeO}_3 \leftrightarrow \text{SeO}_2 + \text{H}_2\text{O}$). После чего остаток растворяли в воде, полученный 0,5 моль/л раствор селенистой кислоты пропускали через хроматографическую колонку (длина - 500 мм, диаметр - 10 мм), заполненной смолой Dowex 50W×8 (200-400 меш). По окончании разделения очищенный раствор H_2SeO_3 упаривали досуха (конечный продукт – SeO_2). Измерение удельной активности примесей радионуклидов в исходном Se и очищенном SeO_2 (100 г) проводили на HPGe-спектрометре (время измерения – 27 суток) в подземной лаборатории (LSM, г. Модан, Франция). Результаты измерений приведены в таблице 5.

Таблица 5. Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{238}U в образцах природного селена, измеренные на HPGe-спектрометре в LSM. (<) - означает, что указаны значения ПО. Доверительная вероятность - 90%.

Примеси радионуклидов	Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов	
	Исходный образец селена (Se)	Очищенный образец селена (SeO_2)
^{40}K	$(5,9 \pm 1,1) \times 10^4$	< 38000
^{226}Ra	$(1,0 \pm 0,1) \times 10^4$	< 5800
^{232}Th	$(6,2 \pm 1,3) \times 10^3$	< 2600
^{238}U	< 48000	< 22000

Как видно из таблицы, содержание ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{238}U , а также ^{40}K в образцах снизилось. Определение содержания ^{227}Ac с помощью низкофоновой γ -спектрометрии имеет высокий порог обнаружения, из-за чего его содержание в исходном и очищенном образце Se мы не определили. Однако, исходя из данных по измеренным коэффициентам распределения Ac (больше 10^4) на катионите Dowex

50W×8 в растворах селенистой кислоты можно достаточно обоснованно предположить, что наша методика применима именно для As, и его коэффициенты будут выше коэффициентов очистки по Ra. Низкий уровень радиоактивных примесей (табл. 5) в очищенном SeO_2 показал применимость нашей хроматографической методики очистки.

Хроматографическую очистку больших количеств природного селена (600 г) проводили на колонке большего размера (длина - 500 мм, диаметр - 28 мм) при комнатной температуре на установке, показанной на рисунке 5:

А) Порцию раствора селенистой кислоты (0,5 моль/л, 5 л) пропускали через колонку со скоростью ~ 40 мл/мин; Б) и затем раствор азотной кислоты (0,1 моль/л, 1 л), элюат собирали в пластмассовую емкость (сосуд 4 на рис. 5);

В) Далее колонку промывали в обратном направлении раствором HNO_3 (5 моль/л, 6 л); Г) и раствором азотной кислоты (0,1 моль/л, 1 л), элюат собирали в пластмассовую емкость (сосуд 3 на рис. 5).

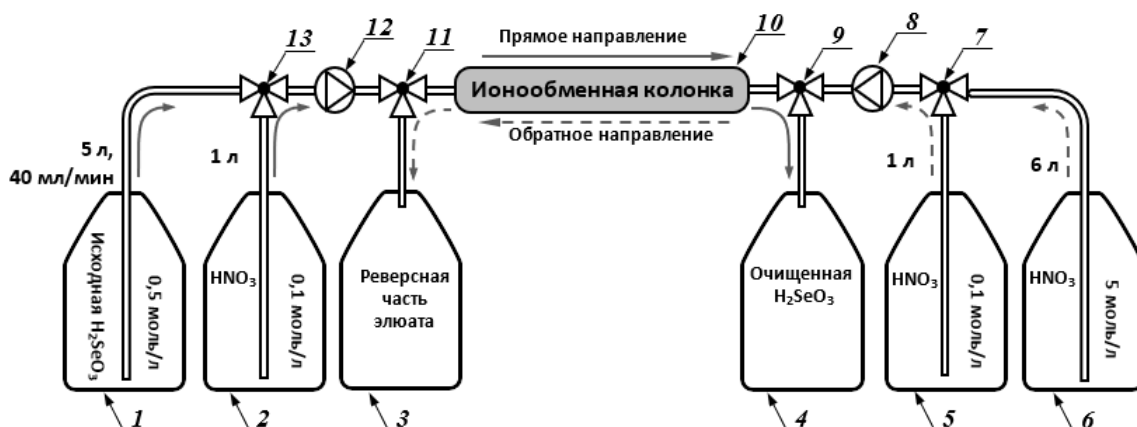


Рисунок 5. Схема установки реверсной катионообменной хроматографической очистки H_2SeO_3 от примесных радионуклидов в направлении обратном элюированию продукта. 1-6 - сосуды с растворами, 7, 9, 11, 13 - тройные краны (вентили), 8, 12 - перистальтические насосы, 10 - ионообменная колонка.

Второй раздел посвящен разработке методики кондиционирования селена.

Для приготовления фольг необходим элементный селен в виде порошка высокой дисперсности со средним размером частиц < 5 мкм.

Первый подраздел посвящен выбору методики кондиционирования селена. Для получения элементарного селена раствор очищенной селенистой кислоты восстанавливали диоксидом серы (SO₂):



Проведены исследования восстановления селена в присутствии стабилизаторов, в частности поливинилового спирта (ПВС) и изопропилового спирта. Результаты показали образование устойчивых коллоидных фракций селена, которые трудно отделить от жидкой фазы. Дальнейшие опыты показали, что полученный в водном растворе без добавления стабилизаторов аморфный селен даже после сушки успешно подвергается пептизации в водно-спиртовом растворе ПВС. Для унификации методики перед вакуумной сушкой предложено гомогенизировать селен в изопропиловом спирте.

Второй подраздел посвящен отработке методики кондиционирования на примере природного селена. Установка для восстановления показана на рисунке 6.

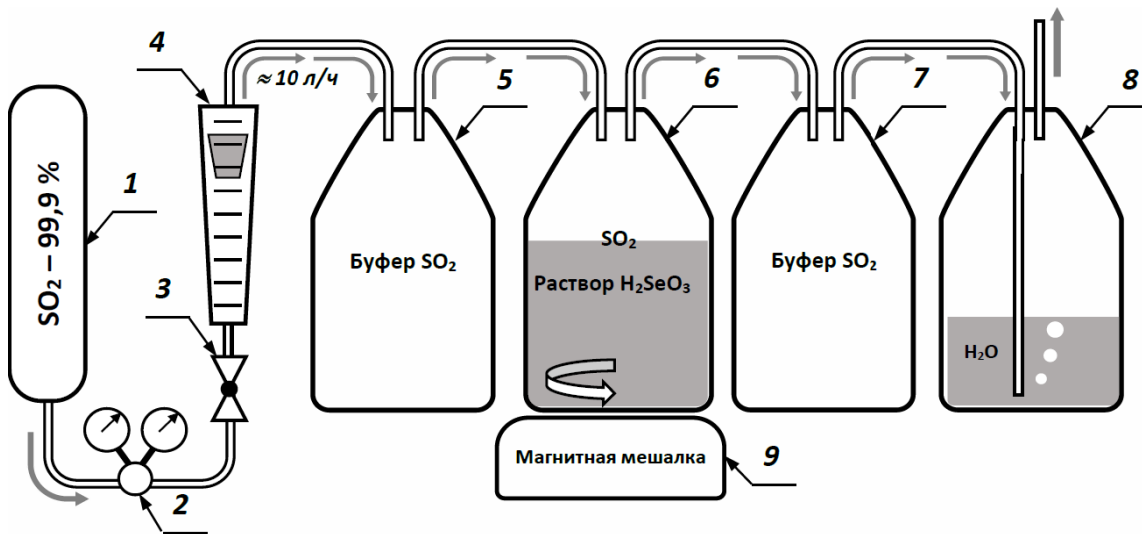


Рисунок 6. Схема установки для восстановления H₂SeO₃ до элементарного состояния с использованием диоксида серы. 1 - баллон с SO₂, 2 - редуктор, 3 - регулирующий кран, 4 - ротаметр, 5-8 сосуды из полипропилена, 9 - магнитная мешалка.

Очищенный раствор H₂SeO₃ (всего 6 л: 5 л очищенный раствор H₂SeO₃ с концентрацией 0,5 моль/л + 1 л промывной раствор 0,1 моль/л азотной кислоты) переливали в сосуд 6 и насыщали через поверхность диоксидом серы. С целью повышения интенсивности поглощения SO₂ раствор перемешивали магнитной

мешалкой. Средний поток SO₂ составлял 10 л/час. Продолжительность восстановления составляла 7 часов. Восстановленный селен отделяли от раствора при помощи декантации и центрифугирования и собирали в центрифужных сосудах объемом 750 мл. В каждом сосуде накапливали примерно 200 г селена.

Далее селен последовательно промывали, вначале дистиллированной водой (10-кратно) и изопропиловым спиртом (5-кратно). Измельчение и гомогенизация крупных частиц селена проводили в изопропиловом спирте до получения однородной суспензии (\approx 5 минут, \approx 500 об./мин). Высушивание селена проводили в вакуумном шкафу, без нагрева, в течение суток, при разрежении (5 мбар).

Анализ исходного (селен технический, марка СТ-1) и очищенного (кондиционированного) образцов природного селена на содержания примесей К, Th и U проводили с помощью методов АЭС-ИСП и МС-ИСП. Из очищенного элементного селена (600 г) приготавливали фольги и проводили измерения (время измерения – 130 суток) на ВiРо-3 спектрометре (табл. 6).

Таблица 6. Сравнение удельных активностей (мкБк/кг) примесей ⁴⁰К, ²²⁶Ra, ²³²Th и ²³⁸U в образцах порошка и фольг природного селена, измеренных с помощью методов АЭС-ИСП, МС-ИСП и ВiРо-3 спектрометрии. Массовое содержание (г/г), определенное методом АЭС-ИСП, МС-ИСП, переведено в мкБк/кг. (<) - означает, что указаны значения ПО. Доверительная вероятность - 90%.

Примеси радионуклидов	Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов		
	Исходный образец селена (Se)	Очищенный образец селена (Se)	
	АЭС-ИСП и МС-ИСП	ВiРо-3	
⁴⁰ К	140000 ± 28000	< 62000	-
²²⁶ Ra	-	-	< 870
²³² Th	< 33000	< 33000	19 – 336
²³⁸ U	< 110000	< 110000	-

Из результатов анализа, приведенных в таблице 6 видно, что в исходном и очищенном образцах природного селена содержание примесей калия методом АЭС-ИСП оценить вполне возможно, однако для определения примесей Th и U чувствительность метода МС-ИСП оказалась недостаточной. Необходимую

чувствительность по определению содержания примесей Th и Ra на уровне ~ мкБк/кг можно получить только при длительных измерениях на низкофоновом ВiРо-3 спектрометре в тонких фольгах. Низкий уровень примесей (табл. 5-6) в целом подтвердил эффективность и перспективность разработанных методик очистки и кондиционирования селена.

В третьем разделе говорится об очистке и кондиционировании 2,5 кг ^{82}Se . Первая часть изотопно-обогащенного селена в виде двуокиси $^{82}\text{SeO}_2$ была приобретена в АО «ПО Электрохимический завод» (г. Зеленогорск, Россия) и именуется далее «Дубна». Его паспортный изотопный состав: ^{82}Se - 99,88%, ^{74}Se - 0,01%, ^{76}Se - 0,01%, ^{77}Se - 0,01%, ^{78}Se - 0,04%, ^{80}Se - 0,05%. Вторая часть $^{82}\text{SeO}_2$ была приобретена у французской компании «CHEMGAS», и именуется далее «Франция». Его паспортный изотопный состав: ^{82}Se - 96,1%, ^{80}Se - 3,9%.

Очистку изотопно-обогащенного ^{82}Se (2,5 кг по металлу), производили аналогично тому, как была осуществлена очистка большого количества природного селена (*второй подраздел первого раздела*). Кондиционирование проводили аналогично *второму подразделу второго раздела*.

В процессе очистки и кондиционирования химический выход изотопно-обогащенного ^{82}Se составляет более 99%. Основные потери (менее 1%) происходят при центрифугировании и гомогенизации. Потери при хроматографическом разделении 200 г ^{82}Se согласно АЭС-ИСП и МС-ИСП образца реверсной части элюата незначительны и составляли 0,1%.

При анализе образцов исходного ($^{82}\text{SeO}_2$) и очищенного селена (^{82}Se) с помощью методов АЭС-ИСП и МС-ИСП нам удалось снизить предел обнаружения примесей K, Th и U на порядок в отношении образцов природного селена. Однако, результаты анализа показали, что такая чувствительность также недостаточна для определения содержания примесей K, Th и U на уровне порядка мкБк/кг. Удельные активности радиоактивных примесей ^{40}K , ^{232}Th и ^{238}U в изотопно-обогащённом ^{82}Se составили < 9300 мкБк/кг, < 8100 мкБк/кг и < 2500 мкБк/кг, соответственно.

В окончании очистки и кондиционирования, основную часть полученного ^{82}Se отправляли в Лабораторию физики частиц г. Анси (LAPP, Франция) для приготовления из него тонких фольг (толщина ~ 300 мкм, длина ~ 2700 см, ширина

~ 13 см): для этого смесь из очищенного и кондиционированного порошка ^{82}Se («Дубна» и «Франция») и ПВС клея наносили на тонкую пленку (полиэтилен толщиной 12 мкм) и высушивали. Приготовленные фольги исследовали под электронным микроскопом (рис. 7). Размер частиц ^{82}Se в фольгах составил ~ 1 мкм.

На конечном этапе, приготовленные из очищенного и кондиционированного порошка ^{82}Se («Дубна» и «Франция») фольги измеряли на низкофоновом ВiРо-3 спектрометре (время измерения – 130 суток). Результаты измерения фольг показали, что содержания ^{232}Th (^{208}Tl) и ^{226}Ra (^{214}Bi) в фольгах ^{82}Se «Дубна» составили: 22-150 (8-54) мкБк/кг, < 600 (< 600) мкБк/кг, соответственно; для фольг ^{82}Se «Франция» - < 294 (< 106) мкБк/кг и < 1370 мкБк/кг, соответственно.

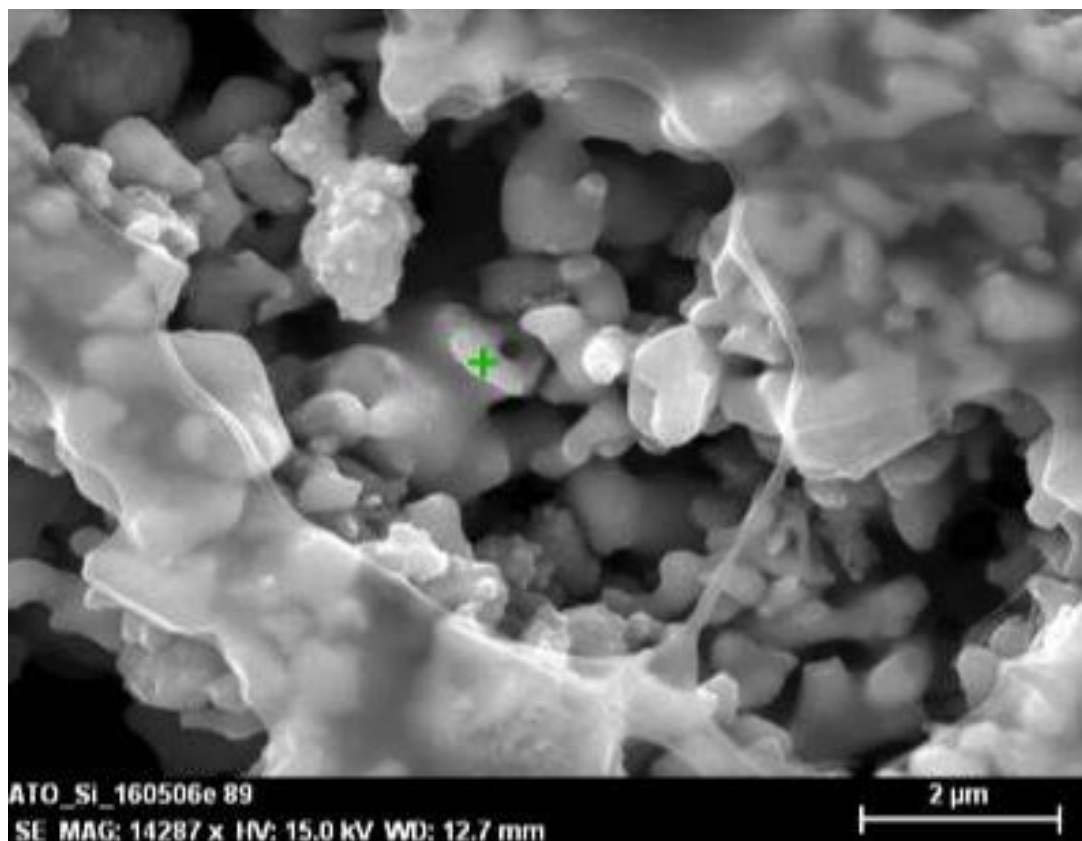


Рисунок 7. Вид ^{82}Se фольги под электронным микроскопом.

Сравнение этих результатов с результатами измерения удельных активностей примесей в фольгах селена-82 эксперимента NEMO-3 показало, что нам удалось снизить содержание ^{208}Tl ~ в 50 раз, а ^{214}Bi - более чем в 2,5 раза (табл. 7). АЭС-ИСП и МС-ИСП образцов порошка изотопно-обогащенного ^{82}Se позволяют сделать

закключение, что удельные активности ^{40}K и ^{238}U снизились более чем в 6 раз и в 7 раз, соответственно.

Таблица 7. Сравнение удельных активностей (мкБк/кг) примесей радионуклидов в фольгах изотопно-обогащенного ^{82}Se экспериментов NEMO-3 (измерены в установке NEMO-3) и SuperNEMO (измерены на ViPo-3 спектрометре). Для ^{40}K и ^{238}U приведены результаты АЭС-ИСП и МС-ИСП образцов селена. (<) - означает, что указаны значения ПО. Доверительная вероятность - 90%.

Примеси радионуклидов	Удельные активности (мкБк/кг) примесей радионуклидов в фольгах ^{82}Se		Коэффициент улучшения
	NEMO-3 [5]	SuperNEMO	
^{40}K	58700 ± 100	< 9300	> 6
^{238}U	17300 ± 100	< 2500	> 7
^{232}Th (^{208}Tl)	1100 ± 28 (400 ± 10)	22 – 150 (8 – 54)	7 - 50
^{226}Ra (^{214}Bi)	17300 ± 100 (17300 ± 100)	< 600 (< 600)	> 2,5

Исходя из результатов таблицы 7 можно сказать, что полученная высокодисперсная форма изотопно-обогащенного элементного ^{82}Se имеет уникально низкое содержание радиоактивных примесей. Полученные результаты превосходят уровни чистоты фольг, измеренные в NEMO-3.

ВЫВОДЫ

1. Разработана методика очистки изотопно-обогащенного селена-82 от радиоактивных примесей и его последующего кондиционирования. Осуществлены очистка и кондиционирование 2,5 кг ^{82}Se . Получена высокодисперсная форма элементного ^{82}Se с низким содержанием радиоактивных примесей, размер частицы селена в приготовленных фольгах составил порядка 1 мкм. Измерения на ViPo-3 спектрометре показали низкое содержание примесей радионуклидов в фольгах изотопно-обогащенного селена. По результатам измерений, содержание примесей составило: 22-150 (8-54) мкБк/кг для ^{232}Th (^{208}Tl) и < 600 (< 600) мкБк/кг для ^{226}Ra (^{214}Bi). Измерения полученных образцов изотопно-обогащённого ^{82}Se с помощью АЭС-ИСП и МС-ИСП показали содержание ^{40}K и ^{238}U на уровне < 9300 мкБк/кг и < 2500 мкБк/кг, соответственно. Уникальный уровень чистоты фольг из

очищенного изотопно-обогащённого ^{82}Se превосходит уровень чистоты фольг предыдущего эксперимента NEMO-3 и отвечает требованиям международного низкофоновго эксперимента SuperNEMO-Демонстратор.

2. Впервые предложен способ очистки селена от примесей радионуклидов ^{40}K , ^{226}Ra , ^{227}Ac , ^{232}Th и ^{238}U , основанный на реверсной катионообменной хроматографии селенистой кислоты с вымыванием примесей в направлении обратном элюированию продукта. Впервые предложена последовательность методов очистки и кондиционирования изотопно-обогащенного ^{82}Se при комнатной температуре: хроматография, восстановление раствора селенистой кислоты диоксидом серы, центрифугирование, гомогенизация, промывка, вакуумная сушка.

3. Разработана методика получения ^{223}Ra , ^{225}Ac , ^{230}U , а также широкого круга радионуклидов из ториевой мишени, облученной протонами с энергией 300 МэВ. Методика выделения основана на отделении широкого круга радионуклидов от тория (1-й этап) на анионитной колонке со смолой AG-1×8 (100-200 меш) в азотнокислом растворе, с последующим хроматографическим разделением на катионите (2-й этап) со смолой AG-50×8 (- 400 меш). Получение ^{230}U основано на его выделении из фракции протактиния ($^{230}\text{Pa}(\beta^-)^{230}\text{U}$).

4. Определены коэффициенты распределения Th, U, Ra, Ac, ряда техногенных радионуклидов Cs (аналог калия), Co и редкоземельных элементов (Y, Ce, Pm, Tm, Yb, Lu) на катионите Dowex 50W×8 (200-400 меш) в растворах селенистой кислоты в диапазоне концентраций 0,5-4 моль/л. Определена оптимальная концентрация селенистой кислоты для очистки на катионите – 0,5 моль/л. Предложен механизм десорбции изученных элементов с катионита при высоких концентрациях селенистой кислоты, в основе которого лежит взаимодействие этих элементов с недиссоциированной формой этой кислоты.

5. Определено содержание примесей в образцах полиэтилена, используемого в качестве нейтронной защиты низкофоновой установки EDELWEISS с помощью метода инструментального нейтронно-активационного анализа. Содержание примесей радионуклидов ^{232}Th и ^{238}U в образцах полиэтилена составило порядка 10^2 - 10^3 мкБк/кг, на основании чего уточнена модель нейтронного фона установки EDELWEISS-3.

СПИСОК РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ АВТОРОМ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Публикации в изданиях из списка ВАК и приравненные к ним:

1. Философов Д.В., **Рахимов А.В.**, Божиков Г. А., Караиванов Д.В., Лебедев Н.А., Норсеев Ю.В., Садыков И.И. Получение радионуклидов из Th-мишеней, облученных протонами энергией 300 МэВ // Радиохимия. 2013. Т. 55. № 4. С. 339-345.
2. **Rakhimov A.V.**, Warot G., Karaivanov D.V., Kochetov O.I., Lebedev N.A., Mukhamedshina N.M., Sadikov I.I., Filosofov D.V. Purification of selenium from thorium, uranium, radium, actinium and potassium impurities for the low background measurements // Radiochimica acta. 2013. V. 101. No 10. P. 653-659.
3. **Rakhimov A.V.**, Brudanin V.B., Filosofov D.V., Loaiza P., Marinov G.M., Mirsagatova A.A., Medvedev D., Mukhamedshina N.M., Rozov S.V., Sadikov I.I., Warot G., Yakushev E.A. Neutron activation analysis of polyethylene from neutron shield of EDELWEISS experiment // Radiochimica acta. 2015. V. 109. No 9. P. 673-678.
4. **Rakhimov A. V.**, Barabash, A.S., Basharina-Freshville A. et al. Development of methods for the preparation of radiopure ^{82}Se sources for the SuperNEMO neutrinoless double-beta decay experiment // Radiochimica acta. 2020. V. 108. No 2. P. 87-97.

Другие публикации

1. **Рахимов А.В.**, Варот Г., Караиванов Д.В., Кочетов О.И., Лебедев Н.А., Мухамедшина Н.М., Садыков И.И., Философов Д.В. Очистка селена от примесей тория, урана, радия, актиния и калия для низкофоновых измерений // Препринт ОИЯИ. Р6-2012-48.
2. **Рахимов А.В.**, Мирсагатова А.А., Мухамедшина Н.М., Розов С.В., Садыков И.И., Философов Д.В., Якушев Е.А. Нейтронно-активационный анализ полиэтилена защиты установки «EDELWEISS» // Препринт ОИЯИ. Р3-2013-109.
3. **Рахимов А.В.**, Садыков И.И., Мухамедшина Н.М., Философов Д.В. Нейтронно-активационный анализ реактивов, используемых при глубокой очистке селена от Th, U, Ra, Ac и K для низкофоновых измерений // Тезисы докладов VI Всероссийской конференции молодых учёных, аспирантов и студентов с

международным участием «Менделеев-2012». 3-6 апреля 2012 г. Санкт-Петербург. С. 96-98.

4. Filosofov D.V., Bojikov G. A., Sadikov I.I., Karaivanov D.V., Lebedev N.A., Norseev Yu.V., **Rakhimov A.V.** Production of radionuclides from the Th-target irradiated at phasotron of DzLNP JINR // Joint Conference: VI Eurasian Conference «Nuclear science and its application» and VIII International Conference «Modern problems of nuclear physics and and Nuclear Technologies». 25-28 September 2012. Samarkand: book of abstract. P. 347-348.

5. **Рахимов А.В.**, Бруданин В.Б., Варот Г., Зампаоло М., Карандашев В.К., Караиванов Д.В., Кочетов О.И., Лебедев Н.А., Пикмаль Ф., Садыков И.И., Философов Д.В. Очистка селена от примесей К, Th, U, Ra и Ac и подготовка образцов для низкофоновых измерений // Тезисы докладов VIII Российской конференции по радиохимии «Радиохимия-2015» 28 сентября - 2 октября 2015 г. Железногорск. С. 412.

6. **Рахимов А.В.**, Бруданин В.Б., Варот Г., Зампаоло М., Карандашев В.К., Караиванов Д.В., Кочетов О.И., Лебедев Н.А., Пикмаль Ф., Садыков И.И., Философов Д.В. Радиохимические аспекты получения образцов селена высокой чистоты для низкофоновых измерений // Тезисы докладов VII Российской молодёжной школы по радиохимии и ядерным технологиям. 12-16 сентября 2016 г. Озёрск. С. 93-95.

7. **Рахимов А.В.**, Варот Г., Караиванов Д.В., Кочетов О.И., Мирзаев Н.А., Мирсагатова А.А., Садыков И.И., Философов Д.В., Шитов Ю.А. Очистка и анализ макроколичеств селена-82 для низкофоновых исследований. Тезисы докладов VI Всероссийского симпозиума «Разделение и концентрирование в аналитической химии и радиохимии» с международным участием. 26 сентября - 2 октября 2021. Краснодар. С. 275.

Цитированная литература

1. Suhonen J, Toivanen J., Barabash, A.S., et al. Renormalized proton- neutron QRPA and double beta decay of ^{82}Se to excited states in ^{82}Kr // Z. Phys. A. 1997. Vol. 358. P. 297-301.

2. Gomez-Cadenas J.J., et al. Physics case of SuperNEMO with Se-82 source // Internal SuperNEMO report [Electronic resource]. 2008.
<https://drive.google.com/open?id=1dNQ7pSDtYOVjgbT9w0fsfnKi2RfsgvxO>.
3. Perrot, F. Status of the SuperNEMO Demonstrator // 38th International Conference on High Energy Physics (ICHEP 2016), Chicago, USA, August 3-10, 2016, PoS (ICHEP2016) 499, <https://doi.org/10.22323/1.282.0499>.
4. Barabash A.S. SuperNEMO double beta decay experiment. J. Phys.: Conf. Ser. - 2012. - Vol. 375. - P. 042012. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/375/1/042012>.
5. Arnold R., Augier C., Barabash A.S. et al. Final results on ⁸²Se double-beta decay to the ground state of ⁸²Kr from the NEMO-3 experiment // Eur. Phys. J. C. 2018. V. 78. No 10. P. 821-835.
6. Armengaud E., Augier C., Benoît A. et al. First results of the EDELWEISS-II WIMP search using Ge cryogenic detectors with interleaved electrodes // Physics Letters B. 2010. V. 687. P. 294-298.
7. Modane Underground Laboratory [Electronic resource]. URL: <http://www.lsm.fr>.
8. Barabash A.S., Basharina-Freshville A., Birdsall E. et al. The BiPo-3 detector for the measurements of ultra low natural radioactivities of thin materials // JINST. 2017. V. 12. P. 06002-06037.
9. Мархол М. Ионнообменники в аналитической химии. Часть 2. М. Мир, 1985. 280 с.