

фигурации) свойства ядер с изменением их нуклонного состава. К наиболее интересным результатам следует отнести:

1) Измерение зарядового радиуса и электрического квадрупольного момента высокоспинового ( $J^\pi = 16^+$ ) изомера в ядре  $^{178}\text{Hf}$ . Оказалось, что квадрупольная деформация у изомера такая же, как и у основного состояния, в то же время зарядовый радиус заметно меньше – такой же, как и у  $^{176}\text{Hf}$ .

2) В цепочке изотопов Тi (от  $^{50}\text{Ti}$  до  $^{44}\text{Ti}$ ) зарядовые радиусы растут с уменьшением числа нейтронов в ядре.

3) На примере радиоактивных изотопов  $^{22}\text{Na}$  и  $^{24}\text{Na}$  была показана возможность инициирования направленной диффузии (дрейфа) выбранного изотопа в газе атомов под действием лазерного излучения. Направление дрейфа атомов можно регулировать, изменяя длину волны лазерного излучения.

В выполнении этих работ принимал участие большой коллектив сотрудников ЛЯР из различных стран-участниц ОИЯИ: Ю.П.Гангрский, Б.Н.Марков, С.Г.Земляной, Г.В.Мышинский, Л.М.Мельников, И.М.Ермолаев (Россия); Э.Г.Наджаков, К.П.Маринова, А.Я.Анастасов, Д.В.Караиванов, Чан Конг Там, Хоанг Тхи, Ким Хуэ, З.Блашак, С.Хойнацки, Б.К.Кульджанов, В.И.Жеменик, Ч.Градечны, Т.Тетчал. Значительная часть работы выполнена в сотрудничестве с научными центрами России, Польши, Франции, Финляндии, Великобритании.

## 9. Радиохимические исследования

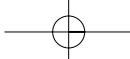
Г.Н.Флёров с самого начала работ с тяжелыми ионами подчеркивал перспективность использования химических методов для решения ряда предстоящих ядерно-физических и технических задач и принципиальную важность изучения химических свойств новейших элементов. В последнем случае наиболее интересны возможные отклонения химических свойств от результатов экстраполяции «по Менделееву» из-за резкого возрастания релятивистского характера атомных электронов при больших  $Z$ .

В ЛЯР постепенно сложился коллектив химиков, в котором кроме российских сотрудников длительное время работали и (или) продолжают работать радиохимики из Чехии, Германии, Польши, Китая, Вьетнама, КНДР, Румынии, Кубы, Болгарии и других стран-участниц ОИЯИ, а также из Франции и Швейцарии.

### 9.1. Химия и радиохимия в водных растворах

Одной из важнейших задач радиохимиков остается тонкая очистка мишенных материалов, прежде всего миллиграммовых количеств высокоактивных трансурановых изотопов, получаемых на реакторах, и изготовление из них мишеней, стойких в интенсивных потоках тяжелых ионов (К.А.Гаврилов, Ю.С.Короткин, Г.В.Букланов). Важная тема – эффективная регенерация дорогостоящих разделенных изотопов (В.Я.Лебедев), используемых в качестве бомбардирующих частиц, например  $^{48}\text{Ca}$  (см. выше пп. 8.1–8.6).

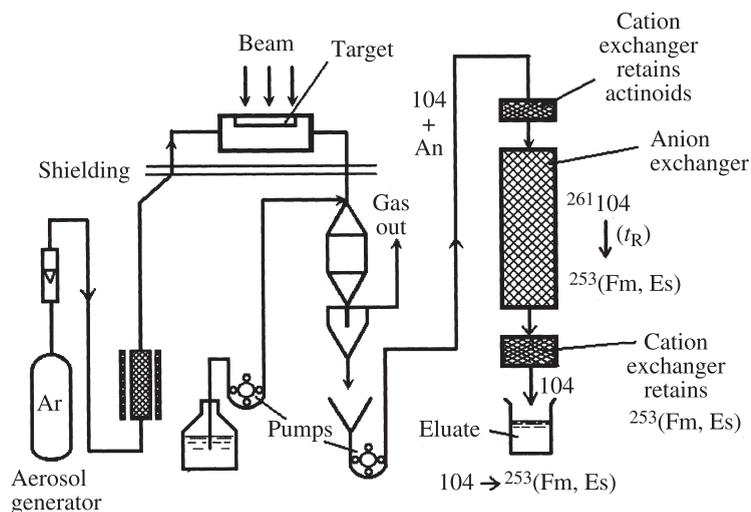
Большой объем исследований был посвящен совершенствованию и развитию эффективных методов выделения и разделения радиоэлементов экстракционными, ионообменными и другими методами радиохимии растворов, для чего необходимо



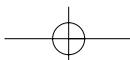
количественное изучение комплексобразования и других физико-химических характеристик элементов. Эти методы применялись для выделения и разделения продуктов ядерных реакций во многих работах ЛЯР по изучению закономерностей взаимодействия тяжелых ионов: каналов реакций, эффективных сечений, углового распределения и т. п. (М.Крживанек, И. Брандштеттер, Х.Брухертзейфер, Б.Горски, О.Константинеску, З.Шегловски, М.Юссонау). Необходимость в них вызвана чрезвычайной сложностью смеси радиоактивных продуктов облучения, что крайне ограничивает возможности чисто инструментального анализа спектрометрами  $\alpha$ -частиц и  $\gamma$ -излучения.

В рамках этого направления был предложен и реализован оригинальный метод изучения химии водных растворов альфа-активных изотопов трансактиноидных элементов (Г.Пфреппер, З.Шегловски, Ю.Ц.Оганесян, И.Звара). Эксперимент аппаратно оформлен как непрерывный процесс транспортировки продуктов ядерных реакций аэрозольной струей от мишени, растворения их и пропускание раствора последовательно через несколько (хроматографических) колонок. Это позволило добиться максимальной эффективности, важной при низких сечениях, и быстродействия — по крайней мере в десятки секунд. Поведение короткоживущих нуклидов  $^{261}_{104}$  прослеживалось после длительного опыта анализом различных «технологических фракций» на содержание достаточно долгоживущего внучатого нуклида  $^{253}\text{Es}$  (на рис. 8 второй катионит и элюат). Исследовались возможности использования такого подхода и для некоторых элементов тяжелее 104-го (З.Шегловски, Б.Кубица).

Накопленный опыт по химии растворов использован в эксперименте в июне 2004 года (С.Н.Дмитриев, С.А.Шишкин и др.) по химическому выделению из продуктов облучения  $^{243}\text{Am}$  ионами  $^{48}\text{Ca}$  (интегральный поток  $3,4 \cdot 10^{18}$ ) спонтанно-делящегося изотопа  $^{268}\text{Db}$  с периодом полураспада около суток. Этот нуклид ранее обнаружен в физических экспериментах на газонаполненном сепараторе и идентифицирован по



**Рис. 8.** Схема опыта по изучению комплексобразования элемента 104

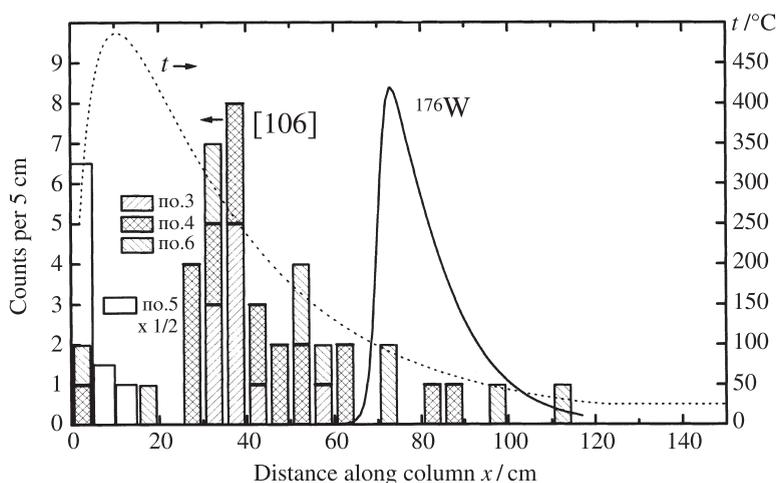


цепочке предшествовавших ему  $\alpha$ -распадов (см. рис. 6). Химическая идентификация атомного номера такой активности является важным шагом вперед в проблеме подтверждения атомных номеров СТЭ. Дубний является химическим аналогом ниобия и выделялся с помощью ионообменных смол в кислотной среде. Во фракции ниобия было зарегистрировано 15 спонтанно-делящихся атомов с  $T_{1/2} \sim 32$  часа.

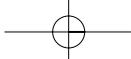
### 9.2. «Газовая» радиохимия

Ряд оригинальных результатов получен при разработке и развитии метода химической идентификации элемента 104, упомянутых выше в пп. 3.2 и 3.3. Его важнейшим моментом являлось получение молекул желаемых химических соединений путем взаимодействия заторможенных в газовом потоке атомов отдачи, выбиваемых из тонкой мишени, с газообразными реагентами. Это позволяет осуществлять опыты в непрерывном режиме при максимальном быстродействии. Для пионерских исследований химии летучих, но легко гидролизующихся неорганических соединений элементов 104, 105, 106, был развит метод термохроматографии. Он позволяет определять летучесть соединений по их адсорбционному поведению в газохроматографических колонках, в которых температура понижается по ходу газа. Физико-химическое обоснование метода (И.Звара) позволило, в частности, создать гибкую программу математического моделирования судьбы отдельных молекул в колонке с использованием метода Монте Карло. На рис. 9 показаны результаты опытов по сравнению поведения оксихлоридов элемента 106 и его аналога – вольфрама (И.Звара, А.Б.Якушев и др.).

После окончания длительного облучения акты спонтанного деления  $^{263}106$  обнаруживали по трекам осколков деления в материале колонки (кварце), выявляемым травлением и просмотром в микроскопе. Изотоп вольфрама детектировался методом гамма-спектроскопии. Различие в поведении элементов невелико, если положение пиков откорректировать с учетом разных периодов полураспада активностей.



**Рис. 9.** Результат опыта по химической идентификации элемента 106 методом термохроматографии



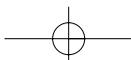
В подобных опытах с хлоридами Hf–Rf (элемент 104) была впервые обнаружена разница в поведении, свидетельствующая о «релятивистских эффектах» в химических свойствах трансактиноидов. Ряд исследований выполнялся при участии химиков из ПСИ Виллинген (Швейцария) и ГСИ Дармштадт (Германия) и с использованием их аппаратуры (Х.Гегелер, А.Тюрлер, М.Шедель).

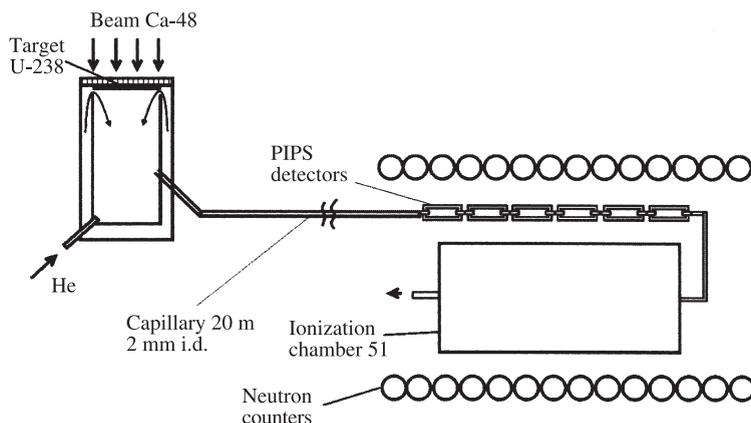
Оригинальным достижением в радиохимии тяжелых элементов явилось газохроматографическое разделение хлоридов трехвалентных лантаноидов и актиноидов при умеренных температурах, осуществленное впервые благодаря введению в газ носителя паров хлорида алюминия (Т.С.Зварова). Последний образует с разделяемыми соединениями газообразные комплексы типа Am (Al<sub>2</sub>Cl<sub>7</sub>)<sub>3</sub> и др., не существующие в конденсированной фазе.

Были проведены систематические исследования термохроматографического поведения окислов, оксогалогенидов и галогенидов переходных элементов 4–10 групп Периодической системы Менделеева (Б.Айхлер, В.П.Доманов, В.З.Белов, Б.Л.Жуйков) и выполнены первые поиски элементов 107, 108, 110 как продуктов реакций горячего слияния (Cf + Ne, Bk + Ne, U + Ar) в химически изолированных фракциях элементов – аналогов. Опыты не были успешными, так как сечения реакций и времена жизни искомым изотопов оказались значительно ниже, чем ожидалось в то время (70–80-е годы).

Похожими по сути, но отличающимися по технике эксперимента являлись исследования термохроматографии атомов металлических элементов. Актиноиды и лантаноиды требуют металлических колонок, высоких температур и предельной чистоты газовой среды (H<sub>2</sub>, He). В ЛЯР впервые осуществлена газовая хроматография Cf и получено экспериментальное свидетельство того, что этот элемент является двухвалентным металлом (З.Хюбнер). Наибольшее внимание уделялось *p*-элементам 12–18 групп, т. е. ряду от Hg до Rn как предполагаемым аналогам сверхтяжелых элементов 112–118. Они сравнительно (с металлами других типов) летучи и химически малоактивны, что позволяет отделять их в элементарном виде от большинства других и металлов и неметаллов. Их энергия адсорбции сильно зависит не только от природы адсорбируемого металла, но и от материала колонки. Вопрос изучался экспериментально, и результаты весьма успешно интерпретируются в предложенной (Б.Айхлер) полуэмпирической модели и схеме расчета. Результаты исследований с модельными элементами легли в основу различных экспериментальных попыток химического выделения СТЭ из облученных мишеней, а также в процессе поисков СТЭ в природных материалах (Б.Жуйков, Т.Реец).

В конце 2001 года была выполнена первая попытка химической идентификации <sup>283</sup>112 (*T*<sub>1/2</sub> = 3 мин) как химического аналога ртути на аппаратуре, показанной на рис. 10. Атомы отдачи из тонкой мишени были заторможены в непрерывном потоке гелия, в котором атомарное состояние ртути устойчиво. Ее единичные атомы вместе с элементом 112 могут без потерь транспортироваться газом при комнатной температуре к удаленным на 25 метров от мишени детекторам спонтанного деления. Это обеспечивает быстрое (~20 с), непрерывное и селективное выделение ртути, остальные тяжелые металлы нелетучи и адсорбируются на стенках газового тракта. Используются детекторы двух типов. Это пассивированные ион-имплантированные кремниевые детекторы (PIPS), на поверхность которых был напылен тонкий слой золота,





**Рис. 10.** Схема химической идентификации элемента 112

извлекающий (прочно сорбирующий) из газа ртуть (и «эка-ртуть») при комнатной температуре. Если же элемент 112 не «эка-ртуть», а, скорее, «инертный металл» с летучестью, близкой к Rn, и не адсорбируется на Au, тогда он попадает с газом-носителем в объем специальной проточной ионизационной камеры, настроенной на селективное детектирование осколков деления. Для надежной идентификации актов спонтанного деления детекторы осколков деления PIPS и ионизационная камера были окружены системой нейтронных счетчиков ( $^3\text{He}$ ) в замедлителе, которые обеспечивали регистрацию нейтронов спонтанного деления (см. рис. 10).

Выход атомов ртути, образующейся в реакции ионов  $^{48}\text{Ca}$  с неодимом, на PIPS-детекторах контролировали и измеряли по альфа-распаду  $^{185}\text{Hg}$  ( $T_{1/2} = 49$  с).

Интегральная доза за четыре календарных недели облучения составила  $3,5 \cdot 10^{18}$ . Полупроводниковые детекторы не зарегистрировали событий совпадения двух больших импульсов на противоположных детекторах, сопровождающихся отсчетами нейтронов, в то время как ионизационная камера зарегистрировала восемь импульсов от осколков деления, сопровождающихся регистрацией от одного до трех нейтронов. Фон камеры равнялся одному импульсу в месяц. Таким образом, с высокой вероятностью зарегистрировано несколько событий распада элемента 112 и сделан вывод, что этот элемент намного более летуч, чем ртуть. Это, скорее всего, проявление релятивистских эффектов в химических свойствах (А.Б.Якушев, И.Звара, Ю.Ц.Оганесян и др.).

## 10. Прикладные исследования

Академик Г.Н.Флёрв был выдающимся ученым, успешно работавшим и над фундаментальными проблемами ядерной физики, и над практическим применением полученных в этой области знаний. Именно благодаря его неутомимой энергии и настойчивости прикладные исследования в ЛЯР стали одним из важных направлений