

**ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ПО ОБРАЗОВАНИЮ
РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
РОССИЙСКИЙ ХИМИКО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени Д. И. МЕНДЕЛЕЕВА**

Кафедра химии высоких энергий и радиоэкологии

ДИПЛОМНАЯ РАБОТА

на тему:

**"ОЦЕНКА СЕЧЕНИЙ ОБРАЗОВАНИЯ СПОНТАННО-
ДЕЛЯЩИХСЯ АКТИНОИДОВ В РЕАКЦИЯХ
МНОГОНУКЛОННЫХ ПЕРЕДАЧ ПРИ СИНТЕЗЕ СТЭ".**

Дипломант:

Терешатов Е.Е.

Научные руководители:

**доктор химических наук,
профессор Очкин А.В.
профессор, зам. директора
ЛЯР им. Г.Н. Флерова, ОИЯИ
Дмитриев С.Н.**

Заведующий кафедрой:

**кандидат химических наук,
доцент Магомедбеков Э.П.**

Консультанты:

– по охране труда

**кандидат химических наук,
доцент Маринина Л.К.**

– по экономике

**кандидат экономических наук,
доцент Валужева Л.А.**

– по экологии

**кандидат химических наук,
доцент Сметанников Ю.В.**

Москва-2005

ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение	3
Глава 1. Литературный обзор	5
1.1. Реакции синтеза сверхтяжелых элементов	5
1.2. Ядерно-физические методы идентификации элементов и характеристика спонтанно-делящихся изотопов актиноидов	15
1.3. Методы выделения и разделения актиноидов	22
1.3.1. Соосаждение трансплутониевых элементов	22
1.3.2. Хроматографические методы	23
1.3.3. Экстракционные методы	27
1.3.4. Экстракционная хроматография	29
Глава 2. Экспериментальная часть	30
2.1. Методика эксперимента	30
2.2. Разделение РЗЭ как аналогов актиноидов	33
2.2.1. Разделение пары элементов Lu – Yb	33
2.2.2. Разделение пары элементов Gd – Eu	35
2.2.3. Разделение пары элементов Eu – Sm	37
2.2.4. Разделение пары элементов Sm – Pm	38
2.2.5. Разделение редкоземельных элементов	40
2.3. Изучение фракции продуктов многонуклонных передач в реакции $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca}$	42
2.3.1. Выделение фракции ТПЭ из сборника ядер отдачи	42
2.3.2. Разделение трансплутониевых элементов	45
2.3.3. Идентификация ТПЭ	47
2.3.4. Оценка сечений образования ТПЭ	53
Выводы	60
Приложение 1. Охрана труда	61
Приложение 2. Экономическая часть	80
Приложение 3. Экологическая часть	88
Список литературы	97

ВВЕДЕНИЕ

Синтез новых сверхтяжелых элементов (СТЭ) Периодической таблицы Д. И. Менделеева остается на сегодня одной из важнейших фундаментальных проблем современной ядерной физики и радиохимии. Осуществленный в последние годы синтез новых элементов с $Z = 112, 113, 114, 115, 116$ и 118 впервые экспериментально подтвердил существование гипотетического "острова" стабильности СТЭ, теоретически предсказанного еще в середине 60-х годов 20-го столетия.

Относительно долгие времена жизни изотопов новых элементов (от секунд до десятков часов) впервые позволили проводить не только определение их ядерно-физических характеристик, но и ставить эксперименты по химической идентификации СТЭ.

Синтез вышеуказанных элементов проводился в реакциях ^{48}Ca с ^{238}U (112 элемент), $^{242, 244}\text{Pu}$ (114 элемент), ^{243}Am (115 и 113 элементы), $^{245, 248}\text{Cm}$ (116 элемент) и ^{249}Cf (118 элемент). Экспериментально наблюдаемые цепочки распада новых нуклидов состояли из одного или нескольких последовательных α -распадов и заканчивались спонтанным делением. Идентификация новых нуклидов основана на характеристиках их радиоактивного распада (энергия α -частиц, суммарная кинетическая энергия осколков спонтанного деления, множественность нейтронов на акт деления, время жизни).

Методики физических и химических экспериментов предусматривают предварительное отделение новых нуклидов от тяжелых актиноидов (Cm, Cf, Fm), особенно от спонтанно-делящихся изотопов этих элементов, которые могут являться источниками фона. Их образование возможно в реакциях многонуклонных передач (протонов и нейтронов) от ядра ускоренного тяжелого иона ядру-мишени. Сечения этих реакций варьируют от единиц пикобарн до десятков микробарн и зависят от условий реакции (Z и N ядра-мишени и Z, N и энергия налетающей частицы).

Целью настоящей работы являлась оценка сечений образования спонтанно-делящихся изотопов актиноидов в реакции $^{48}\text{Ca} + ^{243}\text{Am}$, что является

ся чрезвычайно важным при постановке экспериментов по изучению химических свойств получаемых в данной реакции новых 115 и 113 элементов.

ГЛАВА 1. ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР

1.1. Реакции синтеза сверхтяжелых элементов

Все известные в настоящее время трансплутониевые элементы (ТПЭ) получены искусственно при взаимодействии ядер тяжелых элементов с заряженными частицами или нейтронами. Возможность существования в земной коре сколько-нибудь заметных количеств ТПЭ (из числа известных) представляется весьма сомнительной, поскольку период полураспада $T_{1/2}$ наиболее долгоживущего изотопа трансплутониевых элементов ^{247}Cm , равный $1,56 \cdot 10^7$ лет [1], намного меньше геологического возраста Земли ($4,5 \cdot 10^9$ лет).

Известно, что изменения в соотношении протонов и нейтронов в ядрах приводят к β -распаду. Избыток нейтронов (протонов) в ядре приводит к уменьшению энергии их связи. Таким образом, нулевая энергия связи этих частиц определяет границу существования нейтронно- и протонно-избыточных ядер [2].

Другая граница связана с максимально возможным числом нуклонов в ядре. Предельная масса ядра вблизи границ его стабильности – даже при наиболее благоприятном соотношении протонов и нейтронов (ядра, оказывающиеся на линии β -стабильности) – определяется спонтанным делением (СД). Впервые этот тип ядерной трансформации тяжелых нуклидов наблюдался для изотопа ^{238}U ($T_{\text{SF}} = 8,20 \cdot 10^{15}$ лет [3]) К. А. Петржаком и Г. Н. Флеровым в 1940 году [4]. Для описания этого явления Н. Бор и Дж. Уилер предложили жидко-капельную модель ядерного деления [5].

Эта теоретическая модель основана на предположении о том, что ядро подобно капле заряженной жидкости. Деформация капли вследствие кулоновских сил постепенно приводит к ее делению на две части с приблизительно равными массами. Деление происходит по механизму туннельного прохождения через потенциальный барьер, препятствующий ядерной деформации. С увеличением Z высота барьера деления быстро уменьшается и при некотором критическом значении Z ядро становится абсолютно нестабильным по отношению к спонтанному делению ($T_{\text{SF}} \sim 10^{-19}$ сек). По

оценкам Н. Бора и Дж. Уилера эта критическая ситуация наступает, как только заряд ядра достигает значения $Z = 104 - 106$. Радиоактивные свойства синтезированных в 1940-50х годах Г. Сиборгом с сотрудниками трансурановых элементов качественно подтвердили жидко-капельное подобие ядерной материи: при переходе от ^{238}U ($Z = 92$) к ^{257}Fm ($Z = 100$) вероятность спонтанного деления возросла более чем на 13 порядков. Однако открытие в 60-х годах изомеров, способных спонтанно делиться, и обнаружение значительных вариаций парциальных времен жизни относительно спонтанного деления противоречило жидко-капельной модели ядра.

Более детальный анализ теоретических и экспериментальных значений ядерных масс показал, что отклонения экспериментальных значений энергий ядерных связей от теоретических носят регулярный характер: они максимальны (самая большая энергия связи) при определенных "магических" числах протонов и нейтронов в ядре. Используя терминологию атомной физики, магические числа в ядре соответствуют замкнутым протонным и нейтронным оболочкам.

На основе этих данных в середине 60-х годов были сделаны предсказания о существовании "острова" стабильности сверхтяжелых элементов, расположенных вблизи замкнутых оболочек $Z = 114$ и $N = 184$ [6]. Эти предсказания существенно стимулировали развитие работ по синтезу СТЭ, прогнозированию и изучению их химических свойств. Приведенная таблица 1 показывает, к каким подгруппам переходных металлов должны принадлежать элементы второй сотни.

Таблица 1

Расположение элементов второй сотни

Группы элементов															
IIIб	IVб	Vб	VIб	VIIб	VIIIб		Iб	IIб	IIIб	IVб	Vб	VIб	VIIб	VIIIб	
3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
La – Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
Ac – Lr	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	112	113	114	115	116	117	118

Приведены также номера групп по рекомендации ИЮПАК

В последнее время проводятся работы по поискам в природе следов элементов с зарядом ядра $Z > 106$ [7], для которых теоретические расчеты предсказывают повышенную стабильность ядер [8].

Первые искусственные изотопы элементов тяжелее урана были получены в результате последовательных реакций радиационного захвата нейтронов и β^- -распада. Энергия возбуждения таких ядер составляет около 6 – 8 МэВ. Сегодня этот способ является практически наиболее важным, так как только в высокопоточных ядерных реакторах возможно получить весовые количества изотопов элементов с $Z = 93 - 100$.

Некоторые изотопы элементов (^{253}Es и ^{255}Fm) были получены в результате подземных термоядерных взрывов при мгновенном облучении исходного материала потоком нейтронов, интегральное значение которого достигало величин порядка $10^{24} - 10^{25}$ нейтр/см².

Возможности метода по синтезу новых элементов с помощью нейтронного захвата ограничены недостаточной плотностью нейтронных потоков, малой вероятностью захвата большого числа нейтронов и (что наиболее важно) высокой скоростью радиоактивного распада ядер с $Z > 100$. Поэтому попытки его использования для дальнейшего продвижения к области более тяжелых ядер больше не предпринимаются.

Многие изотопы ТПЭ были получены путем реакций ядер мишени с легкими заряженными частицами – протонами, дейтронами и α -частицами. В этом методе в процессе слияния в ядро-мишень вносится вся масса бомбардирующего ядра, что позволяет получать нейтронно-дефицитные изотопы, не образующиеся при нейтронном облучении, и изотопы далеких ТПЭ. Существенным отличием реакций такого типа от реакций с нейтронами является наличие потенциального барьера, который необходимо преодолеть заряженной частице для проникновения в ядро мишени. Величина барьера увеличивается с увеличением масс взаимодействующих ядер, что видно из данных таблицы 2.

Потенциальные барьеры для реакций протонов, дейтронов и α -частиц
с тяжелыми ядрами, МэВ [9]

Ядро-мишени	Протон	Дейтрон	α -частица
^{238}U	12,3	11,9	22,7
^{239}Pu	12,5	12,2	23,2
^{249}Bk	12,6	12,4	23,7
^{250}Cf	12,8	12,5	23,9
^{252}Fm	13,1	12,8	24,3

Избыточная энергия образовавшегося возбужденного составного ядра снимается в основном через эмиссию нейтронов и γ -лучей.

Поскольку в реакциях с протонами, дейтронами и α -частицами заряд синтезируемого ядра увеличивается по сравнению с исходным не более чем на 2 единицы, для получения по этим реакциям изотопов 102-го элемента необходимо иметь мишень из фермия. Ввиду отсутствия весомых количеств фермия и более далеких элементов для синтеза элементов с $Z \geq 102$ используется облучение более легких мишеней (U, Pu, Am) [10, 11, 12, 13] ускоренными тяжелыми частицами ($^{10}, ^{11}\text{B}$, $^{12}, ^{13}\text{C}$, ^{14}N , $^{16}, ^{18}\text{O}$, ^{19}F , ^{22}Ne) [14, 15, 16]. Потенциальный барьер таких реакций значительно выше, чем в случае реакций с легкими частицами, как это видно из таблицы 3.

Таблица 3

Потенциальные барьеры для реакций многозарядных ионов
с тяжелыми ядрами, МэВ [9]

Ядро мишени	Ионы			
	^{11}B	^{12}C	^{16}O	^{22}Ne
^{238}U	52,4	62,4	81,0	98,1
^{242}Pu	53,3	63,5	82,5	99,9
^{243}Am	53,9	64,1	83,3	100,8
^{244}Cm	54,4	64,7	84,1	101,8
^{252}Cf	55,1	65,6	85,2	103,1

По отношению к реакциям нейтронного захвата, ведущим к образованию актиноидов с сечением в десятки и сотни барн, сечение образования трансактиноидов в реакциях с тяжелыми ионами составляет всего 10^{-6} – 10^{-4} барн и экспоненциально убывает при продвижении в область сверхтяжелых элементов. Однако, несмотря на столь низкие сечения, реакции с тя-

желыми ионами являются, по существу, единственным способом синтеза элементов с $Z > 100$.

Долгое время считалось предпочтительным использование наиболее асимметричных реакций, т. е. максимально возможная тяжелая мишень и легкое бомбардирующее ядро. При этом потенциальный барьер составлял более 50 МэВ, и данные реакции получили названия реакций "горячего" слияния [11], с помощью которых были синтезированы изотопы элементов с $Z = 102 - 110$ [17]. Каждый испаряемый нейтрон способен унести из ядра энергию в среднем порядка 10 – 12 МэВ, поэтому для "остывания" составного ядра должно вылететь до 5 нейтронов. С испарением нейтронов конкурирует процесс деления возбужденного ядра. Для элементов с $Z = 104 - 105$ вероятность испарения одного нейтрона в 500 раз меньше вероятности деления. Это объясняет малый выход новых элементов.

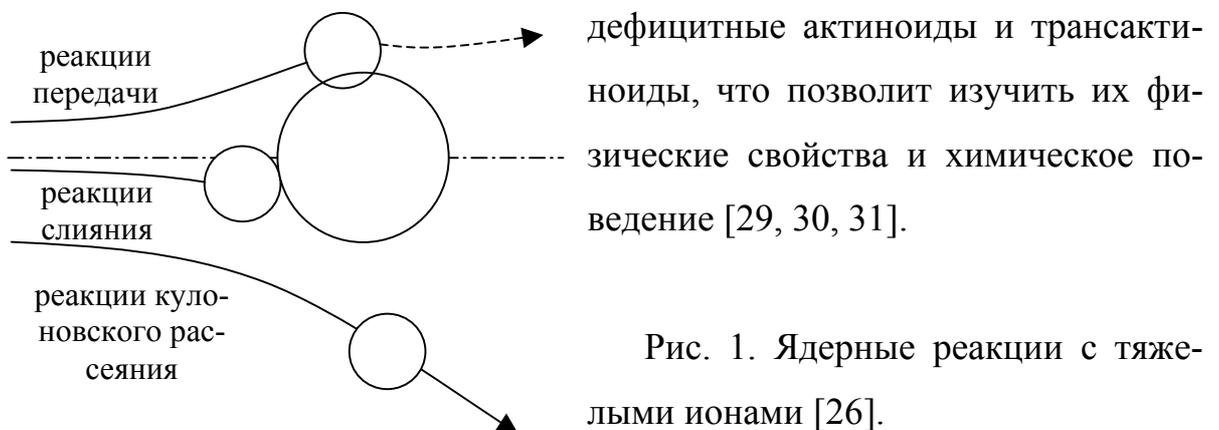
Основные усилия были затрачены на получение в высокопоточных реакторах весомых количеств наиболее тяжелых изотопов трансурановых элементов от Pu до Fm, которые использовались в качестве мишеней материалов. Работы в этом направлении, проведенные в 60-х – начале 70-х годов в Берклиевской национальной лаборатории имени Лоуренса (США) и Лаборатории ядерных реакций имени Г. Н. Флерова (ОИЯИ, Дубна), привели к открытию изотопов трех последних из серии актиноидов ($_{101}\text{Md}$, $_{102}\text{No}$, $_{103}\text{Lr}$) [18, 19, 20] и изотопов первых трех трансактиноидных элементов ($_{104}\text{Rf}$, $_{105}\text{Db}$, $_{106}\text{Sg}$) [21, 22, 23].

В начале 70-х годов было показано, что определенными преимуществами по сравнению с асимметричными реакциями имеют реакции слияния магических ядер. При использовании в качестве мишени дважды магического ядра ^{208}Pb и налетающих частиц с массой $A \geq 50$, потенциальный барьер уменьшается до 10 – 20 МэВ, что существенно увеличивает вероятность выживания компаунд-ядра. Для снятия возбуждения такой ядерной системы достаточно испарения 1-2 нейтронов. Данные реакции получили название реакций "холодного" слияния [11] и с их использованием в 80-х – 90-х годах в Дармштадте (Германия) и Дубне были синтезированы легкие

нейтронно-дефицитные изотопы элементов 107-111 [24, 25].

В начале 60-х годов прошлого века Р. Кауфманн и Р. Вольфганг открыли новый вид ядерных превращений – реакции передачи [26]. Это группа ядерных взаимодействий, в которых происходит передача некоторого числа нуклонов от одного ядра другому (рис. 1).

В последнее время проявляется интерес к реакциям передачи и реакциям слияния на тяжелых ионах [27, 28]. Одна из причин такого интереса – возможность передачи большого числа нуклонов между налетающими частицами и ядрами мишени или даже их слияние. В результате таких превращений могут быть получены нейтронно-избыточные и нейтронно-



Другая причина заключается в том, что существует вероятность синтезировать новые тяжелые или даже сверхтяжелые элементы (рис. 3) в окрестности предсказываемого "острова" стабильности ($Z = 114$, $N = 184$). Наиболее многообещающими являются попытки использования дважды магического ядра ^{48}Ca в качестве налетающей частицы [32, 33, 34, 35, 36]. Дело в том, что реакции "холодного" слияния не могут использоваться в случае СТЭ, так как компаунд-ядро с $Z \geq 114$ было бы нейтронно-дефицитным, и продукты испарения нейтронов расположились бы далеко от границы предсказываемого "острова" стабильности сверхтяжелых элементов.

Лишь два изотопа, из представленных в таблице 4, являются дважды магическими: ^{40}Ca и ^{48}Ca . Получение в синтезируемом ядре заданного количества протонов не вызывает сложностей. Основная проблема заключается в "удержании" необходимого числа нейтронов в ядре. Поэтому с учетом испарения нейтронов при охлаждении компаунд-ядра, а следовательно

но, и для попадания в область СТЭ, выбор пал на нейтронно-избыточный изотоп ^{48}Ca . Расход этого изотопа составляет 0,5 мг/ч при условии, что интенсивность пучка ионов Ca^{5+} – $4\text{-}8\cdot 10^{12}$ частиц/сек.

Идея состоит в следующем: отказываясь от использования магических ядер для мишени при переходе от ^{208}Pb к нейтронно-избыточным изотопам актиноидных элементов, вновь приобретаются магические числа протонов и нейтронов, но уже в налетающей частице.

Из-за значительного дефекта масс в дважды магическом ядре ^{48}Ca энергия возбуждения компаунд-ядра составляет около 30 МэВ. Охлаждение ядра будет происходить через эмиссию трех-четырех нейтронов и γ -лучей. Можно ожидать, что при этой энергии возбуждения оболочечные эффекты все еще заметны в нагретом ядре, и вероятность выживания продуктов испарения больше, чем в случае с обычными реакциями горячего слияния ($E \geq 50$ МэВ).

Эффективные сечения таких реакций составляют $10^{-34} - 10^{-36}$ см², а периоды полураспада новых нуклидов находятся в интервале от нескольких миллисекунд до нескольких лет в зависимости от числа протонов и нейтронов в синтезированных ядрах.

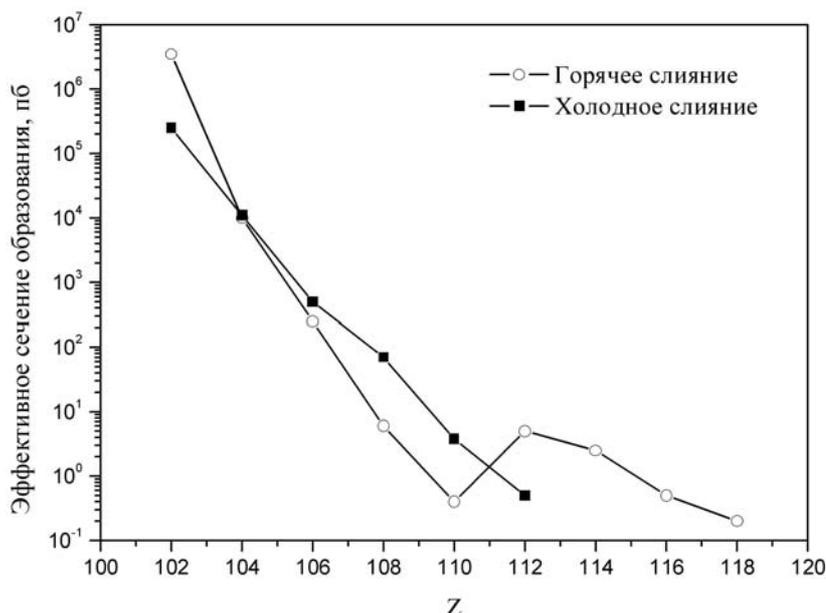


Рис. 2. Эффективные сечения образования тяжелых ядер в реакциях "горячего" и "холодного" слияний [11].

Таблица 4
Распространенность в природе изотопов Ca

Изотоп	Атом. %
^{40}Ca	96,94
^{42}Ca	0,647
^{43}Ca	0,135
^{44}Ca	2,086
^{46}Ca	0,004
^{48}Ca	0,187

В 1999 – 2004 годах в Дубне в Лаборатории ядерных реакций были проведены эксперименты по синтезу изотопов элементов 112 [37], 114 [12] и 116 [38] с использованием в качестве мишеней изотопов урана, плутония и кюрия соответственно (^{238}U , ^{242}Pu , ^{245}Cm), а также изотопов новых элементов 115 [13] и 118 [39] в реакциях $^{243}\text{Am} (^{48}\text{Ca}, xn)$ и $^{249}\text{Cf} (^{48}\text{Ca}, xn)$.

Радиоактивные свойства изотопов трансактиноидных элементов представлены в таблице 5.

Таблица 5

Характеристика ядер

Z	A	Тип распада (доля распада, %)	T _{1/2}	E _α , МэВ
118	294	α	1,8 ^{+8,4} _{-0,8} мс	11,65 ± 0,06
116	293	α	61 ⁺⁵⁷ ₋₂₀ мс	10,54 ± 0,06
	292	α	18 ⁺¹⁶ ₋₆ мс	10,66 ± 0,07
	291	α	6,3 ^{+11,6} _{-2,5} мс	10,74 ± 0,07
	290	α	15 ⁺²⁶ ₋₆ мс	10,85 ± 0,08
115	288	α	87 ⁺¹⁰⁵ ₋₃₀ мс	10,46 ± 0,06
	287	α	32 ⁺¹⁵⁵ ₋₁₄ мс	10,59 ± 0,09
114	289	α	2,6 ^{+1,2} _{-0,7} с	9,82 ± 0,05
	288	α	0,80 ^{+0,27} _{-0,16} с	9,94 ± 0,06
	287	α	0,51 ^{+0,18} _{-0,10} с	10,02 ± 0,06
	286	α (40) / СД (60)	0,16 ^{+0,07} _{-0,03} с	10,20 ± 0,06
113	284	α	0,48 ^{+0,58} _{-0,17} с	10,00 ± 0,06
	283	α	100 ⁺⁴⁹⁰ ₋₄₅ мс	10,12 ± 0,09
112	285	α	29 ⁺¹³ ₋₇ с	9,15 ± 0,05
	284	СД	97 ⁺³¹ ₋₁₉ мс	–
	283	α	4,0 ^{+1,3} _{-0,7} с	9,54 ± 0,06
	282	СД	0,50 ^{+0,33} _{-0,14} мс	–
111	280	α	3,6 ^{+4,3} _{-1,3} с	9,75 ± 0,06
	279	α	170 ⁺⁸¹⁰ ₋₈₀ мс	10,37 ± 0,16
110	281	СД	11,1 ^{+5,0} _{-2,7} с	–
	279	α (10) / СД (90)	0,18 ^{+0,05} _{-0,03} с	9,70 ± 0,06
109	276	α	0,72 ^{+0,87} _{-0,25} с	9,71 ± 0,06
	275	α	9,7 ⁺⁴⁶ _{-4,4} мс	10,33 ± 0,09
108	275	α	0,15 ^{+0,27} _{-0,06} с	9,30 ± 0,07
107	272	α	9,8 ^{+11,7} _{-3,5} с	9,02 ± 0,06
106	271	α (50) / СД (50)	2,4 ^{+4,3} _{-1,0} мин	8,53 ± 0,08
105	268	СД	29 ⁺⁹ ₋₆ ч	–
	267	СД	73 ⁺³⁵⁰ ₋₃₃ мин	–
104	267	СД	2,3 ^{+11,1} _{-1,0} ч	–

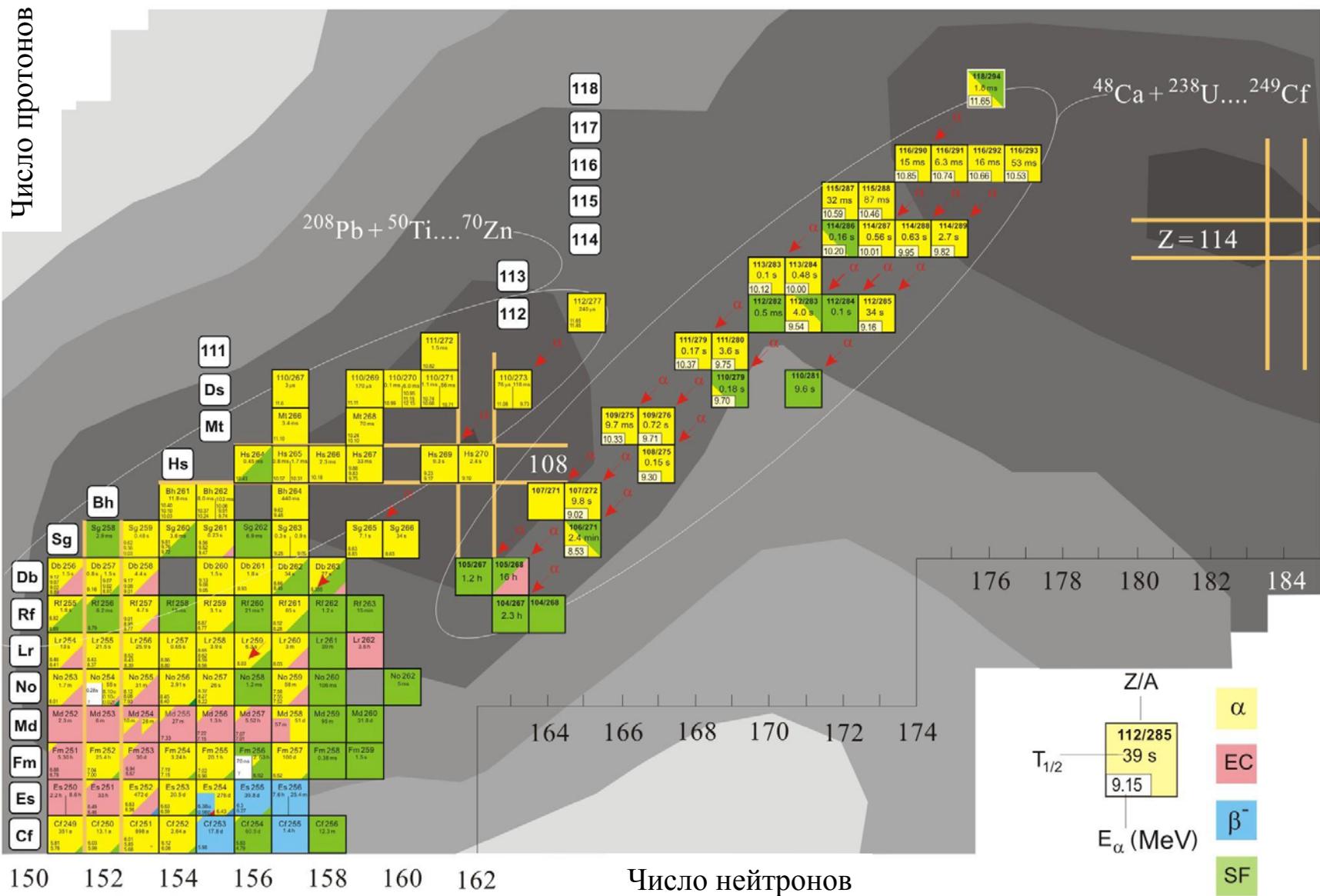


Рис. 3. "Острова" стабильности и синтезированные элементы второй сотни.

1.2. Ядерно-физические методы идентификации элементов и характеристика спонтанно-делящихся изотопов актиноидов

Особое внимание заслуживают экспрессные физические методы идентификации тяжелых элементов, быстроедействие которых составляет микросекунды.

Новым нуклидам в продуктах облучения с высоким выходом сопутствуют многие изотопы известных элементов с меньшим Z , которые своим излучением могут имитировать синтезируемый элемент и мешать его обнаружению. Эти изотопы образуются в реакциях многонуклонных передач. Как правило, их называют "продуктами передачи (нуклонов)" в отличие от "продуктов полного слияния".

Идентификацию начинают с отделения продуктов ядерных реакций от материала мишени. В этой операции, как в физических, так и химических исследованиях, используется тот факт, что при слиянии ядра-снаряда с ядром-мишенью составное ядро приобретает полный импульс снаряда. Тогда при достаточно малой толщине мишени ядра нового трансуранового элемента вылетают из мишени за счет энергии отдачи, двигаясь по направлению пучка бомбардирующих частиц. Одновременно выбиваются и продукты передачи. Для их разделения используется комбинация магнитных и электрических полей, которая вызывает расщепление первоначально почти одинаковых траекторий частиц различных типов. "Коэффициент очистки" новых ядер от пучка бомбардирующих (непрореагировавших) частиц должен быть порядка 10^{12} [40], в противном случае они мешают функционированию детекторов радиоактивного распада.

Самыми быстродействующими современными установками для идентификации нуклидов являются работающие в режиме "on-line" сепараторы, способные "на лету" (в вакууме) отделять выбитые из мишени ядра новых элементов от бомбардирующих ионов и нежелательных продуктов передачи. Такими установками являются известные сепараторы SHIP в ГСИ, Дармштадт, и ГНС в ОИЯИ, Дубна.

Эффективность кинематических сепараторов зависит от соотношения

масс взаимодействующих ядер. Для реакций слияния, вызванных относительно легкими налетающими частицами ($A \leq 20$), она составляет лишь нескольких процентов, и достигает 30 – 50 % в случае налетающих частиц с массой $A \geq 40$. Используемые установки также обладают высокой селективностью: в фокальной плоскости сепаратора фон от первичного ионного пучка практически отсутствует, и выход продуктов реакций неполного слияния подавляется на четыре – семь порядков, в зависимости от кинематических характеристик различных каналов, ведущих к образованию этих продуктов. Этого однако не достаточно для идентификации очень редких событий получения атомов новых элементов.

Особая траектория синтезированных новых ядер в сепараторе все же не является достаточно точной мерой Z и массового числа A , и отделение продуктов передачи может быть неполным. Поэтому ядра направляют в сложную систему детекторов заряженных частиц (α -частиц и осколков СД). В фокальной плоскости сепаратора атомы отдачи имплантируются в многостриповый полупроводниковый кремниевый детектор, активная площадь которого составляет 50 см^2 . Длина и ширина стрипов, а также их число, определяются размером изображения. Каждый стрип имеет продольную чувствительность. Позиционное разрешение каждого стрипа определяется экспериментально. Это достигается выбором реакций, в которых известные атомы отдачи испытывают последовательный α -распад или спонтанное деление. Позиционное разрешение зависит от типа регистрируемых частиц (ядра отдачи, α -частицы или осколки спонтанного деления). Однако более 95 % всех заряженных частиц, сопровождающих распад имплантируемого ядра, как правило, находится в пределах $\Delta_x \sim 1,5 \text{ мм}$. Таким образом, вся площадь фронтального детектора эффективно разделяется на приблизительно 500 индивидуальных ячеек. Каждая ячейка несет информацию о времени прибытия и энергии ядер отдачи, а также о времени последовательных распадов. Фронтальный детектор окружен боковыми детекторами. Таким образом, вся система представляет собой сборку с от-

крытой передней стенкой. Это увеличивает эффективность детектирования α -частиц от распада имплантированного ядра до 85 – 87 % от 4 π .

Все способы регистрации осколков основаны на наблюдении тех изменений, которые происходят при их движении в веществе. В результате этих изменений происходит преобразование энергии осколков в форму, удобную для измерений (например, энергию электрического тока, светового потока), либо образование видимых дефектов или неоднородностей [41].

Для разделения сигналов ядер отдачи от сигналов, ассоциированных с частицами его распада, перед фронтальным детектором устанавливают времяпролетный детектор. Отбор искоемых ядер от побочных событий осуществляется по их генетическим распадам. Материнское ядро, имплантированное в детектор, может быть надежно идентифицировано, если последовательные α - и β -распады ведут к нуклидам с известными свойствами. Этот метод успешно применялся в экспериментах, посвященных синтезу изотопов элементов с $Z = 107 - 111$ в реакциях "холодного" слияния.

Быстродействие метода идентификации в сепараторах определяется только временем пролета ядром расстояния в несколько метров от мишени до детектора, это время составляет микросекунды. Недостатком этой сложной техники является невысокая общая эффективность, поскольку большие коэффициенты очистки достигаются ценой значительных потерь, так что регистрируются и идентифицируются всего лишь несколько процентов синтезированных искоемых ядер.

Метод идентификации по дочерним продуктам α -распада успешно применялся без использования сепараторных установок при проведении реакции синтеза элементов 102 – 106, где выходы измерялись по крайней мере десятками атомов в сутки, а времена жизни – секундами. В этом случае от пучка исходных частиц избавлялись путем сорбции ядер отдачи на поверхности "сборников", которые затем механически перемещали к детекторам, находящимся на достаточном удалении от мишени; этот цикл

многokратно повторяли.

В экспериментах по химической идентификации новых нуклидов изучение химических свойств их разделения от актиноидов проводят с использованием различных вариантов сорбционных или экстракционных методов. Особое внимание уделяют отделению от спонтанно-делящихся изотопов актиноидов. Характеристика спонтанно-делящихся изотопов актиноидов приведена в таблице 6.

Таблица 6

Периоды полураспада ядер, средние числа мгновенных нейтронов $\bar{\nu}_{\text{МГН}}$ и средние кинетические энергии $E_{\text{К}}$ осколков деления [3]

Элемент	A	T_{α}	$B_{\alpha}, \%$	T_{β^-}	$B_{\beta^-}, \%$	$T_{\gamma, \text{з.}}$	$B_{\gamma, \text{з.}}, \%$	$T_{\text{СД}}$	$B_{\text{СД}}, \%$	$\bar{\nu}_{\text{МГН}}$	$E_{\text{К}}, \text{МэВ}$
${}_{90}\text{Th}$	230	7,54E+04 лет	100	—	—	—	—	1,98E+18 лет	3,8E-12	1,24	—
	232	1,41E+10 лет	100	—	—	—	—	7,81E+20 лет	1,8E-09	2,13	—
${}_{91}\text{Pa}$	231	3,28E+04 лет	100	—	—	—	—	2,05E+17 лет	1,6E-11	—	—
	234	—	—	6,7 ч	100	—	—	2,55E+08 лет	3,0E-10	—	—
	234m	—	—	1,17 мин	99,84	—	—	2,22E+05 лет	1,00E-09	—	—
	238	—	—	2,3 мин	100	—	—	168,31 лет	2,60E-06	—	—
${}_{92}\text{U}$	230	20,8 дн	100	—	—	—	—	4,07E+10 лет	1,40E-10	—	—
	233	1,59E+05 лет	100	—	—	—	—	2,65E+17 лет	6,00E-11	—	—
	234	2,46E+05 лет	100	—	—	—	—	1,50E+16 лет	1,64E-09	1,63	—
	235	7,04E+08 лет	100	—	—	—	—	1,01E+19 лет	7,00E-09	—	—
	236	2,34E+07 лет	100	—	—	—	—	2,49E+16 лет	9,40E-08	1,89	168,2
	238	4,47E+09 лет	100	—	—	—	—	8,20E+15 лет	5,45E-05	1,98	—
${}_{93}\text{Np}$	237	2,14E+06 лет	100	—	—	—	—	1,07E+18 лет	2,00E-10	—	—
${}_{94}\text{Pu}$	236	2,86 лет	100	—	—	—	—	2,09E+09 лет	1,37E-07	2,21	—
	238	87,7 лет	100	—	—	—	—	4,74E+10 лет	1,85E-07	2,24	—
	239	2,41E+04 лет	100	—	—	—	—	8,04E+15 лет	3,00E-10	—	—
	240	6,56E+03 лет	100	—	—	—	—	1,14E+11 лет	5,75E-06	2,17	180,4
	241	5,86E+05 лет	0,00245	14,35 лет	99,998	—	—	5,98E+16 лет	2,40E-14	—	—
	242	3,73E+05 лет	100	—	—	—	—	6,74E+10 лет	5,54E-04	2,153	179,96
	244	8,08E+07 лет	99,879	—	—	—	—	6,67E+10 лет	0,121	2,30	181,8
${}_{95}\text{Am}$	241	432,2 лет	100	—	—	—	—	1,01E+14 лет	4,30E-10	—	—
	243	7,37E+03 лет	100	—	—	—	—	1,99E+14 лет	3,70E-09	—	—
${}_{96}\text{Cm}$	240	27 дн	99,5	—	—	14,72 лет	0,5	1,89E+06 лет	3,90E-06	—	—
	242	162,8 дн	100	—	—	—	—	7,00E+06 лет	6,37E-06	2,538	—
	243	29,1 лет	99,71	—	—	1,00E+04 лет	0,29	5,47E+11 лет	5,30E-09	—	—
	244	18,1 лет	100	—	—	—	—	1,32E+07 лет	1,37E-04	2,696	181,5
	245	8,50E+03 лет	100	—	—	—	—	1,39E+12 лет	6,10E-07	—	—

Элемент	A	T _α	B _α , %	T _{β-}	B _{β-} , %	T _{γ.з.}	B _{γ.з.} , %	T _{СД}	B _{СД} , %	V _{МГН}	E _к , МэВ
⁹⁶ Cm	246	4,73E+03 лет	99,9737	—	—	—	—	1,80E+07 лет	0,0263	2,950	184,2
	248	3,40E+05 лет	91,61	—	—	—	—	3,71E+06 лет	8,39	3,157	182,5
	250	9,68E+04 лет	8	1,29E+05 лет	6	—	—	9,00E+03 лет	86	3,17	179,1
⁹⁷ Bk	249	6,05E+04 лет	0,00145	320 дн	99,99855	—	—	1,84E+09 лет	4,76E-08	3,395	—
⁹⁸ Cf	238	—	—	—	—	—	—	21 мс	100	—	—
	240	1,06 мин	87	—	—	—	—	7,09 мин	13	—	—
	246	35,7 ч	99,9996	—	—	815,07 лет	5,00E-04	1,77E+03 лет	2,30E-04	3,14	196,6
	248	333,5 дн	99,9971	—	—	—	—	3,15E+04 лет	2,90E-03	—	189,3
	249	351 лет	100	—	—	—	—	7,98E+10 лет	4,40E-07	—	—
	250	13,08 лет	99,923	—	—	—	—	1,70E+04 лет	0,077	3,51	187,0
	252	2,645 лет	96,908	—	—	—	—	82,90 лет	3,092	3,7675	186,3
	254	53,30 лет	0,31	—	—	—	—	60,5 дн	99,69	3,83	188,3
	256	2,34E+03 лет	1,00E-06	20,5 ч	1	—	—	12,3 мин	100	—	—
⁹⁹ Es	253	20,47 дн	100	—	—	—	—	6,30E+05 лет	8,90E-06	—	191,3
	254	275,7 дн	100	4,34E+07 лет	1,74E-06	7,55E+05 лет	1,00E-04	2,52E+07 лет	3,00E-06	—	—
	255	1,25 лет	8	39,8 дн	92	—	—	2,23E+03 лет	4,50E-03	—	—
¹⁰⁰ Fm	242	—	—	—	—	—	—	0,8 мс	100	—	—
	244	—	—	—	—	—	—	3,3 мс	100	—	—
	245	4,2 с	99,9	—	—	9,99 мин	0,7	1,17 ч	0,1	—	—
	246	1,1 с	92	—	—	—	—	13,86 с	7,3	—	199,6
	248	36 с	93	—	—	8,09 мин	6,9	9,30 ч	0,1	—	198,7
	250	30 мин	90	—	—	4,5 ч	10	271,74 дн	6,90E-03	—	—
	252	25,39 ч	99,9977	—	—	—	—	124,93 лет	2,32E-03	—	—
	254	3,24 ч	99,9408	—	—	—	—	227,91 дн	0,0592	3,98	194,9
	255	20,07 ч	100	—	—	—	—	9,96E+03 лет	2,30E-05	—	—
	256	1,24 дн	8,1	—	—	—	—	157,6 мин	91,9	3,74	198,2
	257	100,5 дн	99,79	—	—	—	—	130,84 лет	0,21	3,796	197,6
	258	—	—	—	—	—	—	0,37 мс	100	—	238
	259	—	—	—	—	—	—	1,5 с	100	—	245,2
¹⁰¹ Md	247	1,12 с	80	—	—	—	—	4,48 с	20	—	—

Элемент	A	T _α	B _α , %	T _{β-}	B _{β-} , %	T _{э.з.}	B _{э.з.} , %	T _{СД}	B _{СД} , %	$\bar{V}_{\text{МГН}}$	E _к , МэВ
¹⁰¹ Md	248	28 с	20	–	–	7 с	80	3,11 ч	0,05	–	–
	255	5,18 ч	8	–	–	27 мин	92	1,73 дн	1	–	–
	256	12,69 ч	9,3	–	–	78,1 мин	90,7	4,92 дн	1	–	–
	257	31,28 ч	15	–	–	5,52 ч	85	19,55 дн	1	–	–
	258	51,5 дн	100	4,70E+03 лет	0,003	4,70E+03 лет	0,003	4,70E+03 лет	0,003	–	–
	259	6,67 дн	1	–	–	–	–	96 мин	100	–	203,9
¹⁰² No	250	0,5 с	0,05	–	–	–	–	0,25 мс	100	–	–
	252	2,3 с	73,1	–	–	–	–	6,25 с	26,9	4,15	202,4
	254	55 с	90	–	–	8,25 мин	10	8,09 ч	0,17	–	–
	256	2,91 с	99,5	–	–	–	–	9,11 мин	0,53	–	–
	258	2,00 мин	1,00E-03	–	–	–	–	1,2 мс	100	–	–
	260	–	–	–	–	–	–	106 мс	100	–	–
¹⁰³ Lr	253	1,3 с	98	–	–	2,12 мин	1	2,12 с	1	–	–
	254	13 с	78	–	–	46,09 с	22	1,76 ч	0,16	–	–
	256	28 с	80	–	–	1,87 мин	20	23,93 ч	0,026	–	–
	257	0,646 с	100	–	–	–	–	1,15 дн	6,50E-04	–	–
	259	6,3 с	77	–	–	16,17 мин	0,5	21,09 с	23	–	–
	261	–	–	–	–	–	–	39 мин	100	–	–

T_i – период полураспада изотопа; B_i – доля распада i-го типа.

Нетрудно видеть, что для одного и того же изотопа элемента справедливо выражение:

$$B_i \cdot T_i = \text{const.}$$

1.3. Методы выделения и разделения актиноидов

В процессе выделения ТПЭ из облученных мишеней требуется отделить микроколичества ТПЭ от макроколичеств нерадиоактивных и радиоактивных элементов. Для этих целей широкое применение нашли методы осаждения, ионного обмена, экстракции и экстракционной хроматографии.

Выбор метода отделения ТПЭ от посторонних элементов обуславливается химическим составом анализируемого раствора и поставленной задачей. На первых стадиях выделения ТПЭ из материалов, содержащих большие количества макропримесей (алюминий, продукты коррозии), чаще используют методы осаждения и экстракции, а для разделения ТПЭ применяют методы ионного обмена, экстракции и экстракционной хроматографии.

Для выделения и разделения ТПЭ особенно перспективно использование различий в поведении этих элементов в разных валентных состояниях.

Аналитические методы определения ТПЭ, в особенности радиометрические, требуют высокой очистки не только от посторонних излучателей, но и от инертных примесей. Для достижения этого используют многократное повторение операции отделения, а в некоторых случаях последовательное применение нескольких различных методов отделения. Последний прием часто оказывается очень эффективным в процессе разделения транс-плутониевых элементов.

1.3.1. Соосаждение транс-плутониевых элементов

Соосаждение основано на выделении малорастворимого соединения, присутствующего в микроконцентрации, с осадком нерастворимого соединения макрокомпонента [9, 42, 43, 44, 45]. Наличие у транс-плутониевых элементов нескольких валентных форм объясняет и различное поведение последних в реакциях осаждения. Окислительно-восстановительные циклы используются при проведении соосаждения транс-плутониевых элементов с фторидом лантана, фосфатом висмута и др. Главная особенность органических соосадителей состоит в большой эффективности действия в сочетании с высокой избирательностью соосаждения. Эти методы чаще всего используют

для концентрирования трансплутониевых элементов и для сброса основной массы элементов-примесей.

1.3.2. Хроматографические методы

Для выделения и разделения ТПЭ используются почти все существующие хроматографические методы: метод ионного обмена на органических ионообменниках, распределительная хроматография на бумаге или пластинках, а также разделение с помощью хелатных смол и неорганических сорбентов [9]. Наиболее полно исследованным и широко распространенным является метод разделения ТПЭ на органических ионообменниках. Ионообменный хроматографический метод сыграл важнейшую роль в открытии трансплутониевых элементов, поскольку их выделение и химическая идентификация производились по заранее предсказанному положению на кривой вымывания.

Имеющиеся в литературе данные касаются в основном сорбции и разделения трехвалентных ТПЭ [9, 43, 44, 46, 47, 48, 49, 50].

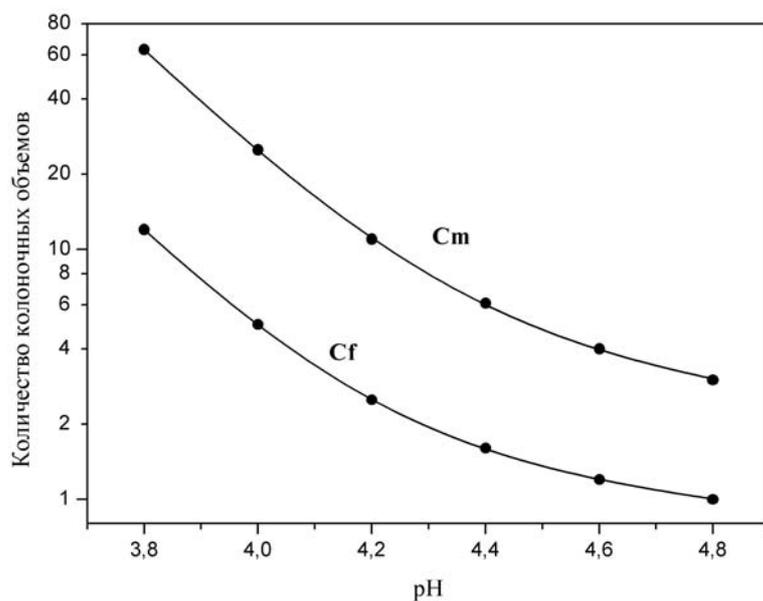
Для целей разделения обычно применяют иониты со средним содержанием дивинилбензола (ДВБ), равным 8 – 10% (содержание ДВБ пропорционально числу поперечных связей в смоле). В некоторых случаях, например при разделении ТПЭ с использованием растворов, в которых равновесие достигается медленно, целесообразнее использовать иониты с более низким содержанием дивинилбензола (~ 4%), а для концентрирования, напротив, с высоким содержанием ДВБ (~ 12%).

Подготовку ионитов ведут обычным способом путем попеременного промывания их кислотами и щелочами. Перед использованием ионит промывают раствором того же состава, из которого будет происходить сорбция элементов. Для уменьшения сорбционной зоны и улучшения разделения сорбцию производят из минимального объема раствора.

Специфика работы с ультрамалыми количествами короткоживущих изотопов ТПЭ привела к развитию экспрессной хроматографии с использованием очень маленьких колонок (диаметром 0,1 – 0,3 см и длиной 1,5 – 5 см) и ионитов с малым зернением (≥ 400 меш). Отбор ионитов по размерам частиц

производят путем просеивания их через сита и отстаивания из водных растворов; наиболее мелкая фракция осаждается со скоростью 0,25 – 0,50 см/мин. В последнее время для разделения ТПЭ стали использовать высокие колонки (50 – 100 см) с малым диаметром (0,1 – 0,5 см), работающие под давлением 80 – 150 г/см². Высокое давление позволяет поддерживать быструю и постоянную скорость элюирования при использовании очень мелкой фракции ионита (10 – 20 мкм), что в свою очередь ускоряет процесс разделения и уменьшает влияние радиолиза. Для разделения используют колонки, которые позволяют работать при комнатной и при повышенной температуре. В последнем случае колонку окружают рубашкой, через которую пропускают воду из термостата или пары какой-нибудь кипящей жидкости.

Очень большое значение при разделении таких сходных между собой элементов, как трансплутониевые элементы, имеет природа комплексообразующего вещества, используемого в качестве элюирующего агента, его кон-



центрация, pH (рис. 4), скорость элюирования и т. д.

Рис. 4. Положение пиков Cm (III) и Cf (III) в зависимости от значения pH при элюировании 0,4 М раствором α-оксиизобутирата аммония с катионита дауэкс-50x12 [9].

Способность смолы обменивать ионы определяется коэффициентом распределения K_d , который равен [51]

$$K_d = \frac{\text{Количество ионов/масса сухой смолы (г)}}{\text{Количество ионов/объем раствора (мл)}}.$$

Степень разделения двух ионов характеризуется фактором разделения, который в некоторых случаях выражается как отношение коэффициентов распределения разделяемых элементов к коэффициенту распределения како-

го-нибудь одного элемента (лантаноида или актиноида). Фактор разделения тогда называется "америциевым", "кюриевым" или "гадолиниевым" числом в зависимости от выбора элемента-стандарта.

При постоянном составе элюента фактор разделения двух соседних элементов получается равным найденному в статических условиях и может быть вычислен по формуле [50]:

$$\alpha = \frac{V_2 - V_0}{V_1 - V_0}, \quad (1)$$

где V_1 и V_2 – объем элюата, соответствующий максимуму выходной кривой; V_0 – свободный объем колонки.

Для выделения и разделения ТПЭ применяются как органические комплексообразующие вещества, так и неорганические кислоты и их соли.

Большое практическое применение при разделении ТПЭ методом катионного обмена нашли оксикарбоновые кислоты. Они используются в основном для внутригруппового разделения ТПЭ. Так как положение пиков на кривых вымывания трансплутониевых элементов этими комплексообразующими веществами соответствует положению их аналогов из группы РЗЭ (рис. 5), то последние часто используются в качестве отметчиков при разделении ТПЭ. Однако при определенных условиях оксикарбоновые кислоты возможно использовать и для отделения ТПЭ от легких РЗЭ и других элементов.

Из-за "лантаноидного" и "актиноидного" сжатий (уменьшение ионного радиуса с увеличением атомного номера) сорбция ионов смолы уменьшается с увеличением атомного номера [51], следовательно, элементы будут вымываться в порядке уменьшения атомных номеров.

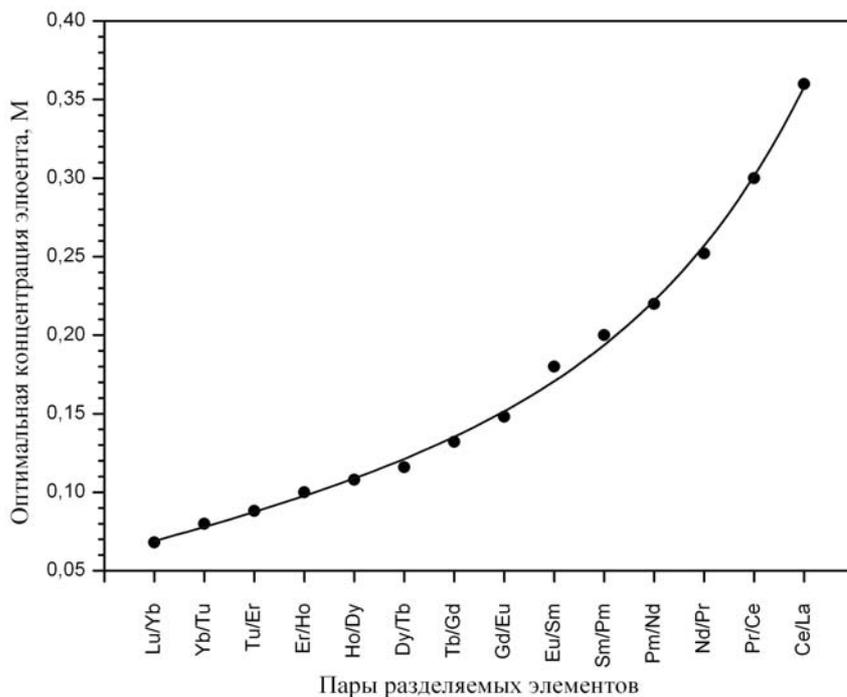


Рис. 5. Положение РЗЭ и актиноидов при вымывании α -оксиизобутиратом аммония при температуре 20 °С [52].

В водных растворах образуются преимущественно соединения лантаноид-

дов и актиноидов с оксикислотами типа MA_j^{3-j} , где $j = 1, 2$ и 3 . Установлено, что в системе M^{3+} – α -оксиизомасляная кислота при концентрациях лиганда $\geq 0,1$ М в растворах преобладают комплексы MA_4^- [53].

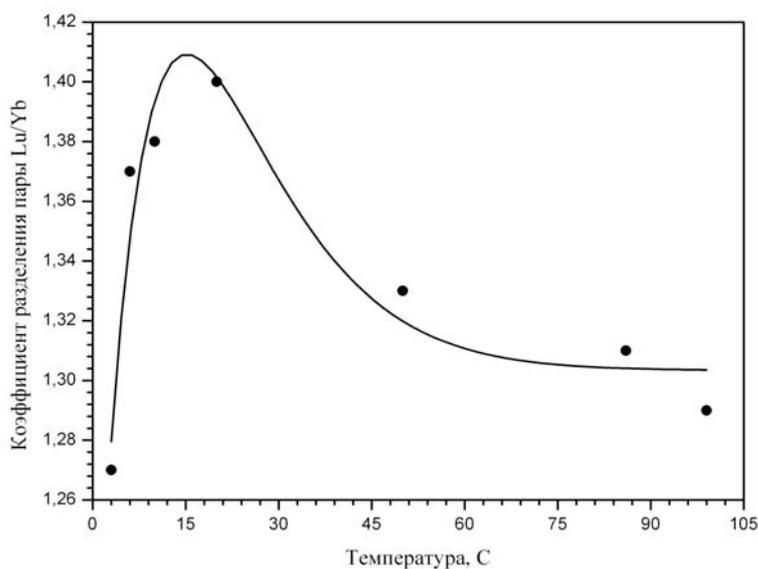
Наиболее эффективным элюентом из исследованных оксикарбоновых кислот оказалась α -оксиизомасляная кислота, что видно из таблиц 7 и 8.



Были определены оптимальные концентрации α -оксиизобутирата аммония для разделения пар соседних РЗЭ.

Рис. 6. Разделение пар соседних элементов РЗЭ [50].

Для ускорения установления равновесных условий разделение часто проводят при нагревании до ~ 90 °С. Однако изменение температуры также влияет на размеры комплексообразующего аниона (вследствие изменения колебательного движения его атомов) и в связи с этим на избирательность комплексообразования (рис. 7). К тому же выполнение разделения при комнатной температуре значительно экономит время и не требует громоздкого аппаратного обеспечения [54, 55].



К тому же выполнение разделения при комнатной температуре значительно экономит время и не требует громоздкого аппаратного обеспечения [54, 55].

Рис. 7. Влияние температуры на коэффициент разделения [52].

Коэффициенты разделения редкоземельных элементов

Температура элюирования, °С	Фактор разделения															Литература
	Lu/Yb	Yb/Tu	Tu/Er	Er/Ho	Ho/Y	Y/Dy	Dy/Tb	Tb/Gd	Gd/Eu	Eu/Sm	Sm/Pm	Pm/Nd	Nd/Pr	Pr/Ce	Ce/La	
Лактат аммония																
87	1,28	1,36	1,44	1,42	1,20	1,16	1,45	1,62	1,18	1,27	1,36	1,32	1,40	1,70	1,49	[44]
90	1,31	1,43	1,47	1,52	1,21	1,14	1,56	1,73	1,22	1,28	1,32	1,38	1,36	1,73	1,83	[52]
20	1,4	1,54	1,55	1,60	1,34	1,08	1,65	1,50	1,04	1,20	1,32	1,35	1,38	2,04	2,1	[52]
α-оксиизобутират аммония																
87	1,23	1,43	1,40	1,43	1,25	1,24	1,80	1,79	1,38	1,88	1,65	1,33	1,4	1,71	2,14	[44]
87	1,36	1,33	1,3	1,23	1,56	1,04	1,88	2,2	1,4	1,6	1,82	1,61	1,57	1,6	2,2	[52]
20	1,45	1,37	–	–	1,77	1,1	1,84	1,57	1,54	2,06	1,57	2,09	–	–	–	[52]
Гликолят аммония																
87	1,32	1,5	1,4	1,5	–	–	1,39	1,3	1,06	1,22	1,29	1,26	1,4	1,5	2,6	[52]
20	1,33	1,37	1,4	1,28	–	–	1,04	1,08	1	1,08	1,33	1,83	1,37	2,2	1,64	[52]

Сравнение данных по разделению РЗЭ и ТПЭ на катионите с использованием в качестве элюентов одноосновных оксикарбоновых кислот показывает, что разделение улучшается с удлинением и разветвлением углеродной цепи комплексообразующего реагента [9].

1.3.3. Экстракционные методы

Экстракционные методы выделения и разделения трансплутониевых элементов широко распространены как в аналитической химии этих элементов, так и в технологии их производства. Подготовка образцов к радиометрическому или другому аналитическому определению ТПЭ часто включает экстракционную очистку. Используя разнообразные экстракционные системы, можно осуществить практически все стадии выделения ТПЭ из облученных образцов [9, 43, 49, 56, 57].

Селективность экстракции обеспечивается подбором реагента и его концентрации, растворителя, введением комплексообразующих веществ в водную фазу, регулированием ее кислотности. Если факторы разделения элементов невелики, используют многоступенчатую экстракцию или прибегают к экстракционно-хроматографическому методу разделения.

Таблица 8

Разделение трансплутониевых элементов на катионитах [9]

Состав элюента		Ионит			Температура элюирования, °С	Фактор разделения										
концентрация, М	рН	тип	ДВБ, %	зернистость, мкм		Am/Cm	Am/Bk	Cm/Bk	Cm/Cf	Bk/Cf	Bk/Es	Cf/Es	Cf/Fm	Es/Fm	Es/Md	Fm/Md
Цитрат аммония																
0,25	3,05	Дауэкс-50	-	-	87	1,24	-	1,28	-	-	-	-	-	-	-	-
0,25	3,35	»	12	38 – 75	87	1,20	-	1,63	-	1,26	-	1,22	-	1,19	-	-
0,18	3,55	Дауэкс-50	12	12	87	-	-	-	-	-	-	-	1,44	-	-	1,18
Лактат аммония																
0,4	4,1 – 4,2	Дауэкс-50	12	38 – 75	-	1,21	1,8	1,54	2,35	1,55	1,93	1,25	1,72	1,45	-	-
0,32	4,5 – 5,0	Дауэкс-50	12	12	87	1,16	-	-	2,40	-	-	-	2,08	-	-	1,33
0,32	4,5 – 5,0	Катекс-С	8	12	86	1,13	-	-	2,07	-	-	-	-	-	-	-
0,32	4,5 – 5,0	»	8	15	Комнатная	1,14	-	-	-	-	-	-	1,25	-	-	-
Тартрат аммония																
0,1	4,0	Дауэкс-50	12	< 38	Комнатная	1,3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
0,1	4,3	»	12	< 38	87	1,07	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Гликолят аммония																
0,25	-	Дауэкс-50	12	< 38	Комнатная	1,25	-	-	-	1,49	-	1,19	-	-	-	-
0,25	-	»	12	< 38	87	1,24	-	-	-	-	-	1,17	-	-	-	-
α-оксиизобутират аммония																
0,4	4,0	Дауэкс-50	12	38 – 75	87	1,40	-	2,25	-	2,25	-	1,54	-	1,87	-	1,4
0,4	4,0	»	4	38 – 75	Комнатная	1,39	-	2,67	-	2,0	-	1,46	-	-	-	-
0,4	4,0	Цеокарб	-	≤ 38	77	1,38	-	-	5,0	-	-	-	-	-	-	-
0,23	4,62	Дауэкс-50	12	-	87	1,45	-	-	-	-	-	1,42	-	1,55	-	1,31
0,25	4,2	»	12	20 – 40	87	1,40	-	2,5	-	2,0	-	-	-	-	-	-

Для экстракционного выделения и разделения ТПЭ используются экстрагенты различных классов (фосфорорганические соединения, амины, хелатообразующие реагенты и т. п.), а также их смеси (синергетическая экстракция).

1.3.4. Экстракционная хроматография

Одним из весьма перспективных и простых методов разделения близких по свойствам элементов, который находит в настоящее время применение для отделения и в особенности для разделения ТПЭ, является распределительная (экстракционная) хроматография [9, 50, 58]. В этом методе удачно сочетаются достоинства экстракции и хроматографической техники. Разделение основано на различии в распределении ионов между двумя несмешивающимися жидкостями, одна из которых подвижна, а другая – фиксирована на носителе.

При отделении и разлении ТПЭ органическая фаза, в качестве которой используются трибутилфосфат, алкилфосфорные кислоты, особенно ди-(2-этилгексил) фосфорная кислота (Д2ЭГФК), третичные амины и четвертичные аммонийные соли, обычно сорбируется на инертном носителе, наполняющем хроматографическую колонку. В качестве носителя применяется силиконизированный силикагель, мелкозернистый тефлон, кизельгур, диатомит, стекло и др. Эти материалы способны прочно удерживать на своей поверхности органическую фазу, химически инертны и не сорбируют разделяемые ионы. После нанесения разделяемой смеси на колонку проводится вымывание отдельных элементов подходящим элюентом. При разлении ТПЭ в качестве элюирующих агентов используются растворы соляной, азотной и хлорной кислот или их солей, а при групповом отделении от редкоземельных элементов растворы роданида аммония.

Эффективность разделения ТПЭ экстракционно-хроматографическим методом зависит от многих факторов, в том числе от размера частиц носителя, емкости нанесенной подвижной фазы, скорости пропускания элюирующего раствора, и температуры, при которой происходит разделение.

ГЛАВА 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

2.1. Методика эксперимента

Ионообменное разделение лантаноидов проводилось на колонке 0,2 x 10 см с сильнокислотной катионообменной смолой Aminex A5 в NH_4^+ - форме. В качестве элюента использовалась α -оксиизомаляновая кислота (α -НИВ) переменной концентрации при $\text{pH} = 4,75$. Навеску кислоты 10,4 г ($M_{\alpha\text{-НИВ}} = 104$ г/моль) растворили в ~ 70 мл бидистиллированной воды, с помощью концентрированного раствора гидроксида аммония довели pH до значения 4,75 (контролировали с помощью электронного pH -метра), перенесли раствор в колбу на 100 мл и затем бидистиллированной водой довели до метки. Таким образом был приготовлен 1 М раствор кислоты, а все последующие растворы (меньшей концентрации) приготавливались путем его разбавления.

Радиоизотопы РЗЭ были получены на синхрофазотроне Ф-1 Лаборатории ядерных проблем (ОИЯИ) облучением металлического Та протонами с энергией $E_p \approx 100$ МэВ. В результате реакций глубокого расщепления образуется сложная смесь радиоизотопов редкоземельных элементов. Характеристика используемых в работе изотопов приведена в таблице 10.

Исходные для разделения растворы 0,1 М HNO_3 готовили упариванием растворов РЗЭ досуха совместно с концентрированной HNO_3 и растворением осадка в 0,1 М HNO_3 .

Характеристика используемых в работе реагентов дана в таблице 9.

Таблица 9

Реактивы и материалы

Вещество	Характеристика
α -НИВ	степень очистки $> 99,0$ %
HNO_3	осч
NH_4Cl	хч
NH_4OH	осч
Aminex A5	катионит, зернение – 13 ± 2 мкм

Ниже приведены основные стадии эксперимента:

- 1) подготовка смолы Aminex A5 (промывка колонки разбавленными растворами HNO_3 , NH_4Cl и α -оксиизобутирата аммония; промывка бидистиллятом);
- 2) подготовка исходной активности: упаривание раствора РЗЭ до суха совместно с концентрированной HNO_3 (избавление от органических примесей, мешающих сорбции) и растворение осадка в 0,1 М HNO_3 ;
- 3) сорбция активности из 0,1 М HNO_3 ;
- 4) промывка подложки и колонки 0,1 М HNO_3 (уменьшение потерь путем переноса в колонку оставшихся на посуде небольших количеств исходного образца);
- 5) промывка колонки 0,5 М NH_4Cl ;
- 6) промывка колонки бидистиллированной водой до $\text{pH} \approx 5,0$;
- 7) элюирование с помощью α -НИВ;
- 8) детектирование с помощью γ -спектрометра.

Все опыты были выполнены при комнатной температуре. Из-за высокого сопротивления сорбента, разделение проводилось под давлением ~ 2 ати, создаваемым сжатым азотом, что позволяло проводить элюирование при скорости истечения раствора 1 капля в 40 – 60 секунд. Элюат собирали порциями по 1 – 5 капель на тефлоновые подложки (слабая адсорбция РЗЭ из раствора комплексообразователя, следовательно, многократность их использования), упаривали его под лампой и проводили детектирование по стандартной методике с помощью γ -спектрометра (германиевый детектор с чувствительным объемом 108 см^3 , разрешение на линии 1,33 МэВ для ^{60}Co равно 1,66 кэВ).

Характеристика используемых в работе изотопов РЗЭ

Элемент	А	T _{1/2}	Тип распада	Наиболее интенсивные линии	
				Е, кэВ	Интенсивность, %
³⁹ Y	88	106,65 дн	β^+	1836,06	99,2
				898,04	93,7
⁶¹ Pm	143 144	265 дн 363 дн	э. з. э. з.	741,98	38,5
				696,49	100,0
				618,01	99,1
⁶² Sm	145 151	340 дн 90 лет	э. з. β^-	61,2	12,7
				21,54	0,031
⁶³ Eu	146	4,59 дн	э. з.	747,20	98,0
				633,03	44
	147	24 дн	э. з.	197,35	26
				121,25	23
	148	54,5 дн	э. з.	550,23	98,63
				629,93	71
	149	93,1 дн	э. з.	327,53	4,03
				277,09	3,55
152	13,33 г	э. з.	121,78	28,38	
			1408,01	20,85	
155	4,68 г	β^-	86,54	32,8	
			105,31	21,8	
⁶⁴ Gd	146	48,27 дн	э. з.	154,57	46,6
				114,71	44,0
	151	124 дн	э. з.	153,6	6,2
				243,29	5,6
153	241,6 дн	э. з.	97,43	27,6	
			103,18	19,6	
⁶⁶ Dy	159	144,4 дн	э. з.	58,00	2,22
⁷⁰ Yb	169	32,02 дн	э. з.	63,12	43,7
				197,96	34,94
⁷¹ Lu	172	6,70 дн	э. з.	1093,61	62,5
				52,39	49,5
	173	1,37 г	э. з.	272,09	18,5
				78,65	11,1
174	3,31 г	э. з.	1241,76	6,5	
			76,5	5,85	
177	160,9 дн	β^-	208,36	62	
			228,44	38	

2.2. Разделение РЗЭ как аналогов актиноидов

Данный раздел является подготовительным этапом для успешного разделения актиноидов, так как РЗЭ, благодаря схожести их электронного строения с первыми, используются в качестве отметчиков. Следовательно, знания о поведении редкоземельных элементах в таких условиях позволят достаточно точно предположить местоположение того или иного актиноида на хроматограмме и провести разделение с относительно высоким коэффициентом разделения.

2.2.1. Разделение пары элементов Lu – Yb

Разделение смеси радиоизотопов Lu и Yb проводили из 0,1 М HNO₃ в соответствии с описанной выше методикой. В таблице 11 приведены результаты γ -измерений исходного раствора.

Таблица 11
Расшифровка спектра исходного раствора радиоизотопов Lu и Yb

№	N, имп	+/-	E, кэВ	Изотопы
1	21704	201	51,89	172Lu
2	10442	142	59,20	172Lu
3	21512	166	78,57	172Lu, 173Lu
4	1686	77	93,38	169Yb
5	13917	139	100,49	173Lu
6	14471	140	109,56	169Yb
7	1356	76	117,97	169Yb
8	10172	122	130,15	169Yb
9	493	61	153,29	177Lu
10	3249	70	170,88	173Lu
11	17371	157	177,15	169Yb
12	29012	182	197,69	169Yb
13	545	49	208,26	177Lu
14	1359	67	233,53	173Lu
15	1575	64	260,88	169Yb
16	48509	230	272,00	173Lu
17	1201	59	285,42	173Lu
18	9086	105	307,62	169Yb
19	435	25	350,39	173Lu
20	88	15	378,89	177Lu
21	795	30	557,59	173Lu
22	1679	44	636,20	173Lu
23	61	10	1093,90	172Lu
24	100	11	1241,95	174Lu

В таблице выделены наиболее удобные линии γ -спектра, по которым определяли относительное количество данного элемента.

Исходный раствор (200 мкл 0,1 М HNO_3 , смесь радиоизотопов Lu и Yb) переносили на колонку с Aminex A5 и проводили разделение изотопов элюированием 0,075 М α -НІВ. Элюат собирали по каплям на тефлоновые подложки и анализировали γ -спектрометрическим методом. Хроматограмма разделения приведена на рис. 8.

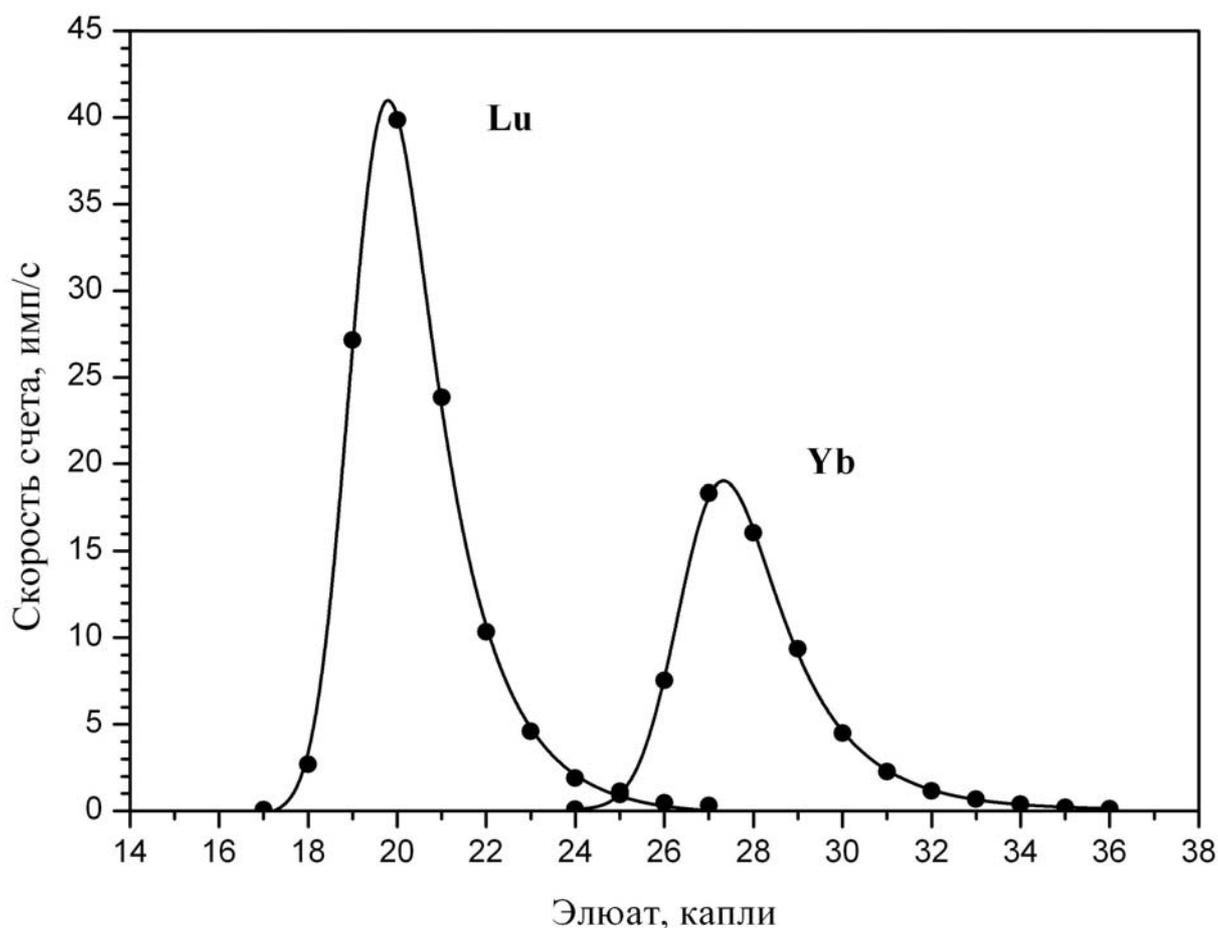


Рис. 8. Хроматограмма разделения пары элементов Lu – Yb с помощью 0,075 М α -НІВ.

Коэффициент разделения данной пары элементов, рассчитанный по формуле 1, (с учетом свободного объема колонки, равного 4^M каплям) составил:

$$\alpha_{\text{Yb/Lu}} = \frac{27 - 4}{20 - 4} = 1,44.$$

Значение полученного коэффициента разделения хорошо согласуется с литературными данными.

2.2.2. Разделение пары элементов Gd – Eu

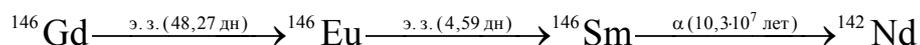
Разделение смеси радиоизотопов Gd и Eu проводили из 0,1 М HNO₃ в соответствии с описанной выше методикой. В таблице 12 приведены результаты γ -измерений исходного раствора.

Таблица 12

Расшифровка спектра исходного раствора радиоизотопов Gd и Eu

№	N, имп	+/-	E, кэВ	Изотопы
1	410	46	22,41	149Eu, 151Gd
2	225	34	69,61	153Gd
3	120	30	75,57	153Gd, 146Gd
4	242	58	84,61	155Eu
5	6742	96	97,30	153Gd
6	1428	59	103,53	153Gd, 155Eu
7	8603	104	115,02	146Gd
8	5778	84	154,21	146Gd, 151Gd
9	626	38	174,51	151Gd
10	515	43	197,15	147Eu
11	906	46	243,00	151Gd, 152Eu
12	143	34	254,12	149Eu
13	553	38	276,62	149Eu
14	143	30	306,97	151Gd
15	567	36	326,99	149Eu, 151Gd
16	66	27	349,35	149Eu
17	55	28	413,59	148Eu
18	213	30	429,60	146Eu
19	29	24	527,96	149Eu
20	136	27	549,19	148Eu
21	2570	55	632,48	146Eu, 148Eu
22	40	14	676,08	147Eu
23	2801	55	745,86	146Eu
24	32	11	796,93	147Eu
25	89	13	1056,16	147Eu, 146Eu
26	105	11	1294,50	146Eu
27	41	8	1404,28	146Eu, 152Eu

В таблице выделены наиболее удобные линии γ -спектра, по которым определяли относительное количество данного элемента. Из-за генетической связи изотопов:



наблюдение за вымыванием Eu удобней проводить по изотопу ¹⁴⁷Eu или же, если проводить измерения сразу после разделения, – по ¹⁴⁶Eu.

Исходный раствор (200 мкл 0,1 М HNO₃, смесь радиоизотопов Gd и Eu)

переносили на колонку с Aminex A5 и проводили разделение изотопов элюированием 0,14 М α -НІВ. Элюат собирали по 3 капли на тефлоновые подложки и анализировали γ -спектрометрическим методом. Хроматограмма разделения приведена на рис. 9.

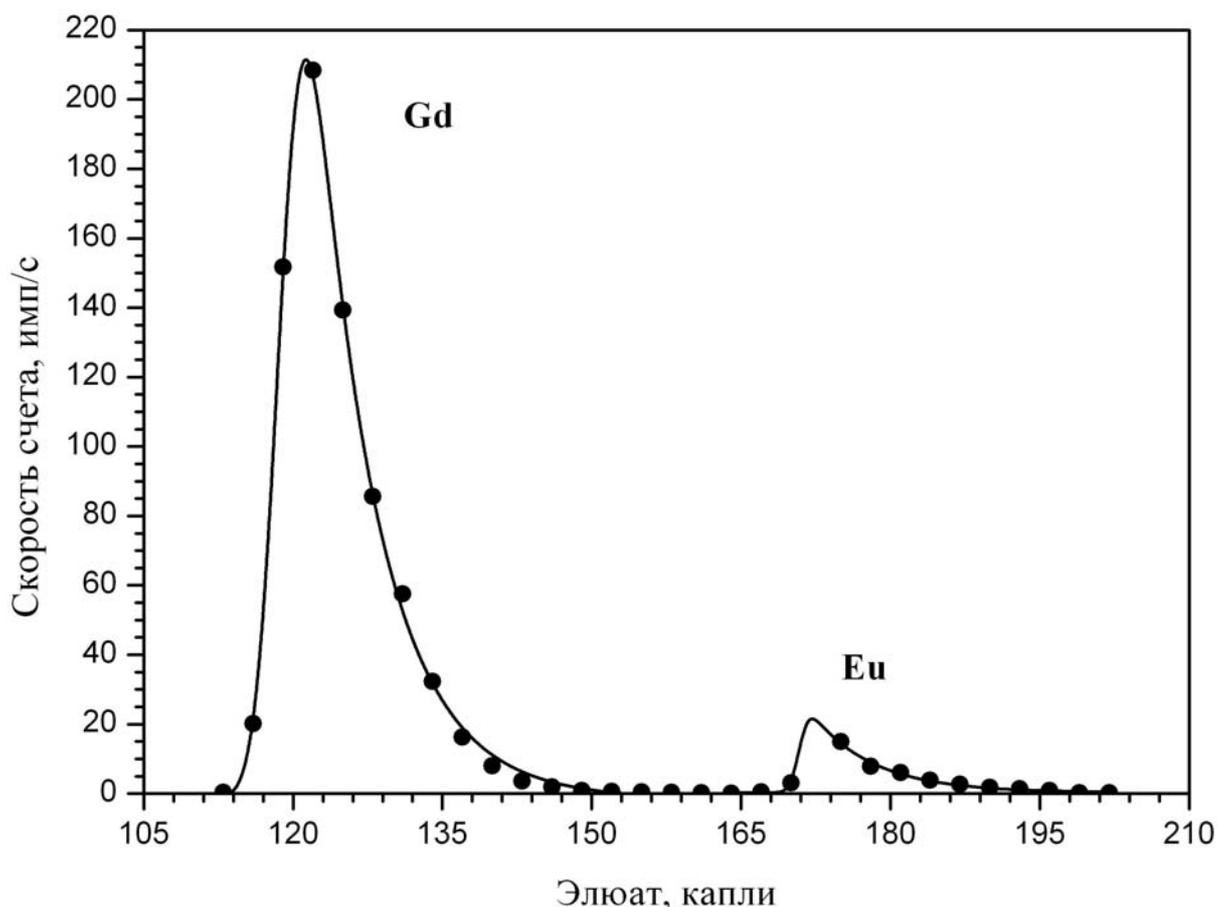


Рис. 9. Хроматограмма разделения пары элементов Gd – Eu с помощью 0,14 М α -НІВ.

Коэффициент разделения данной пары элементов, рассчитанный по формуле 1, (с учетом свободного объема колонки, равного 3^M каплям) составил:

$$\alpha_{Eu/Gd} = \frac{173 - 3}{122 - 3} = 1,43.$$

Значение полученного коэффициента разделения согласуется с литературными данными.

2.2.3. Разделение пары элементов Eu – Sm

Разделение смеси радиоизотопов Eu и Sm проводили из 0,1 М HNO₃ в соответствии с описанной выше методикой. В таблице 13 приведены результаты γ -измерений исходного раствора.

Таблица 13

Расшифровка спектра исходного раствора радиоизотопов Eu и Sm

№	N, имп	+/-	E, кэВ	Изотопы
1	1665	44	60,89	145Sm
2	297	21	120,88	147Eu
3	235	18	196,98	147Eu
4	352	23	254,38	149Eu
5	1878	45	276,81	149Eu
6	1751	43	327,23	149Eu
7	167	15	349,79	149Eu
8	74	10	413,85	148Eu
9	142	13	505,93	149Eu
10	159	13	528,38	149Eu
11	249	18	550,18	148Eu
12	22	6	558,24	149Eu
13	30	6	571,88	148Eu
14	27	7	601,25	147Eu
15	54	8	611,35	148Eu
16	164	14	629,89	148Eu
17	38	7	677,26	147Eu
18	22	5	725,16	148Eu
19	25	6	799,19	147Eu
20	8	4	1033,98	148Eu
21	19	5	1076,58	147Eu

В таблице выделены наиболее удобные линии γ -спектра, по которым определяли относительное количество данного элемента.

Исходный раствор (200 мкл 0,1 М HNO₃, смесь радиоизотопов Eu и Sm) переносили на колонку с Aminex A5 и проводили разделение изотопов элюированием 0,18 М α -НІВ. Элюат собирали по каплям на тефлоновые подложки и анализировали γ -спектрометрическим методом. Хроматограмма разделения приведена на рис. 10.

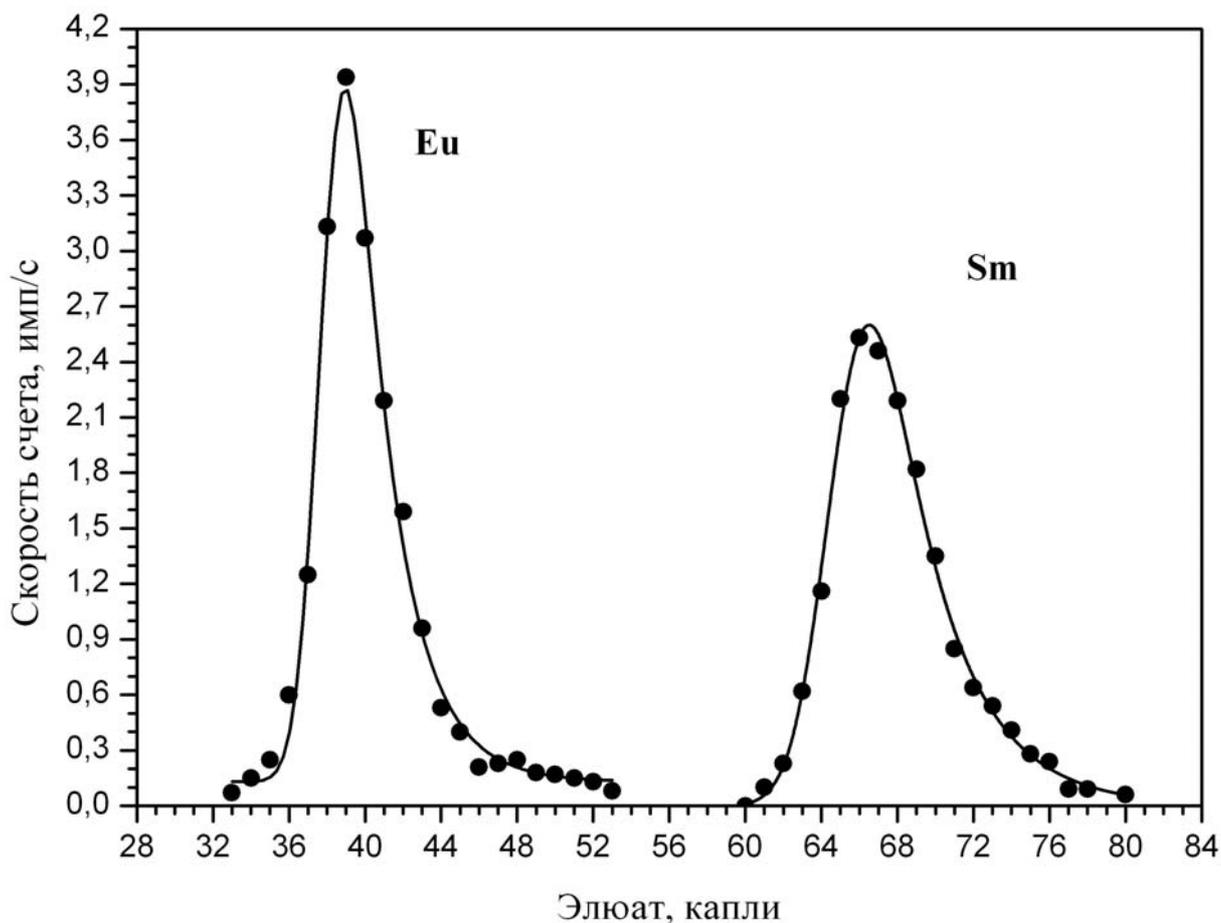


Рис. 10. Хроматограмма разделения пары элементов Eu – Sm с помощью 0,18 М α -НІВ.

Коэффициент разделения данной пары элементов, рассчитанный по формуле 1, (с учетом свободного объема колонки, равного 4^м каплям) составил:

$$\alpha_{\text{Sm/Eu}} = \frac{66 - 4}{39 - 4} = 1,77.$$

Для этой пары элементов значение полученного коэффициента разделения несколько хуже литературных данных. Тем не менее достигнуто полное разделение.

2.2.4. Разделение пары элементов Sm – Pm

Разделение смеси радиоизотопов Sm и Pm проводили из 0,1 М HNO₃ в соответствии с описанной выше методикой. В таблице 14 приведены результаты γ -измерений исходного раствора.

Расшифровка спектра исходного раствора радиоизотопов Sm – Pm

№	N, имп	+/-	E, кэВ	Изотопы
1	1019	56	20,19	151Sm
2	14798	126	60,84	145Sm
3	1097	51	476,80	144Pm
4	2044	50	618,29	144Pm
5	1749	45	696,79	144Pm
6	23444	158	742,49	143Pm

В таблице выделены наиболее удобные линии γ -спектра, по которым определяли относительное количество данного элемента.

Исходный раствор (200 мкл 0,1 М HNO_3 , смесь радиоизотопов Sm и Pm) переносили на колонку с Aminex A5 и проводили разделение изотопов элюированием 0,22 М α -НІВ. Элюат собирали по каплям на тефлоновые подложки и анализировали γ -спектрометрическим методом. Хроматограмма разделения приведена на рис. 11.

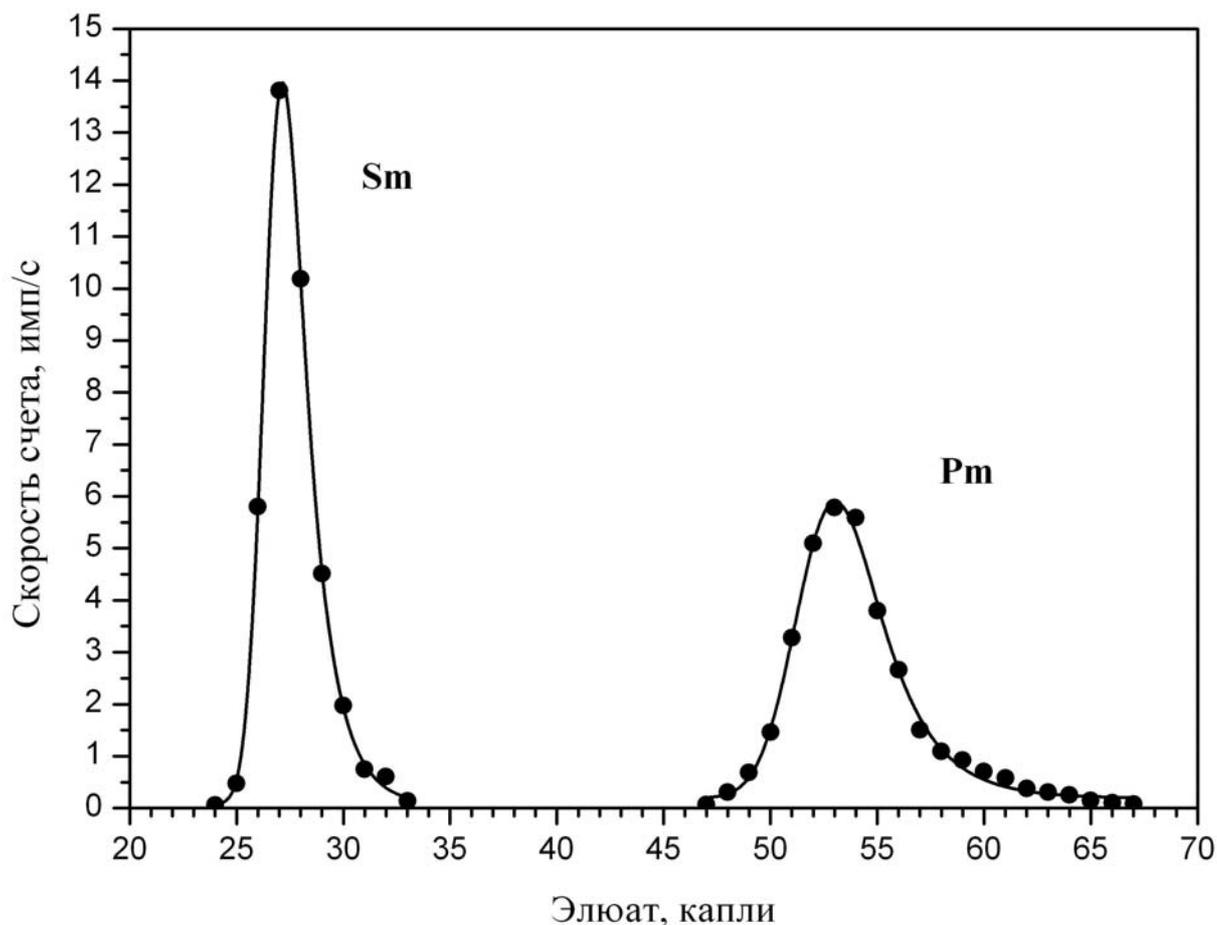


Рис. 11. Хроматограмма разделения пары элементов Sm – Pm с помощью 0,22 М α -НІВ.

Коэффициент разделения данной пары элементов, рассчитанный по формуле 1, (с учетом свободного объема колонки, равного 5^{III} каплям) составил:

$$\alpha_{\text{Pm/Sm}} = \frac{53-5}{27-5} = 2,18.$$

Значение полученного коэффициента разделения несколько лучше литературных данных.

2.2.5. Разделение редкоземельных элементов

Разделение смеси радиоизотопов РЗЭ проводили из 0,1 М HNO₃ в соответствии с описанной выше методикой. В таблице 15 приведены результаты γ -измерений исходного раствора.

Таблица 15

Расшифровка спектра исходного раствора радиоизотопов РЗЭ

№	N, имп	+/-	E, кэВ	Изотопы
1	1651	76	21,61	149Eu, 151Gd, 151Sm
2	1536	73	57,58	159Dy
3	2463	74	60,79	153Gd, 145Sm
4	439	41	69,29	153Gd
5	1196	52	78,22	172Lu, 173Lu
6	13360	127	96,76	153Gd
7	4760	79	97,04	153Gd
8	9921	113	102,88	153Gd, 155Eu
9	276	37	109,42	169Yb
10	4100	73	114,55	146Gd
11	214	30	130,08	169Yb
12	3567	69	153,98	177Lu, 146Gd, 151Gd
13	295	32	170,98	173Lu
14	671	41	174,38	151Gd
15	887	37	197,75	169Yb, 147Eu
16	1405	46	243,14	151Gd, 152Eu
17	2686	62	271,94	173Lu
18	1352	51	276,48	149Eu
19	416	29	307,38	169Yb, 151Gd
20	1597	46	327,17	149Eu
21	291	20	618,27	144Pm
22	1049	38	633,82	146Eu, 148Eu
23	234	17	696,65	144Pm
24	2173	49	742,48	143Pm
25	1161	40	747,63	146Eu
26	173	17	898,47	88Y
27	71	9	1835,95	88Y

В таблице выделены наиболее удобные линии γ -спектра, по которым определяли относительное количество данного элемента.

Исходный раствор (200 мкл 0,1 М HNO_3 , смесь радиоизотопов РЗЭ) переносили на колонку с Aminex A5 и проводили разделение изотопов элюированием α -оксиизомасляной кислотой со ступенчатым изменением концентрации. Элюат собирали по каплям на тефлоновые подложки и анализировали γ -спектрометрическим методом. Хроматограмма разделения приведена на рис. 12.

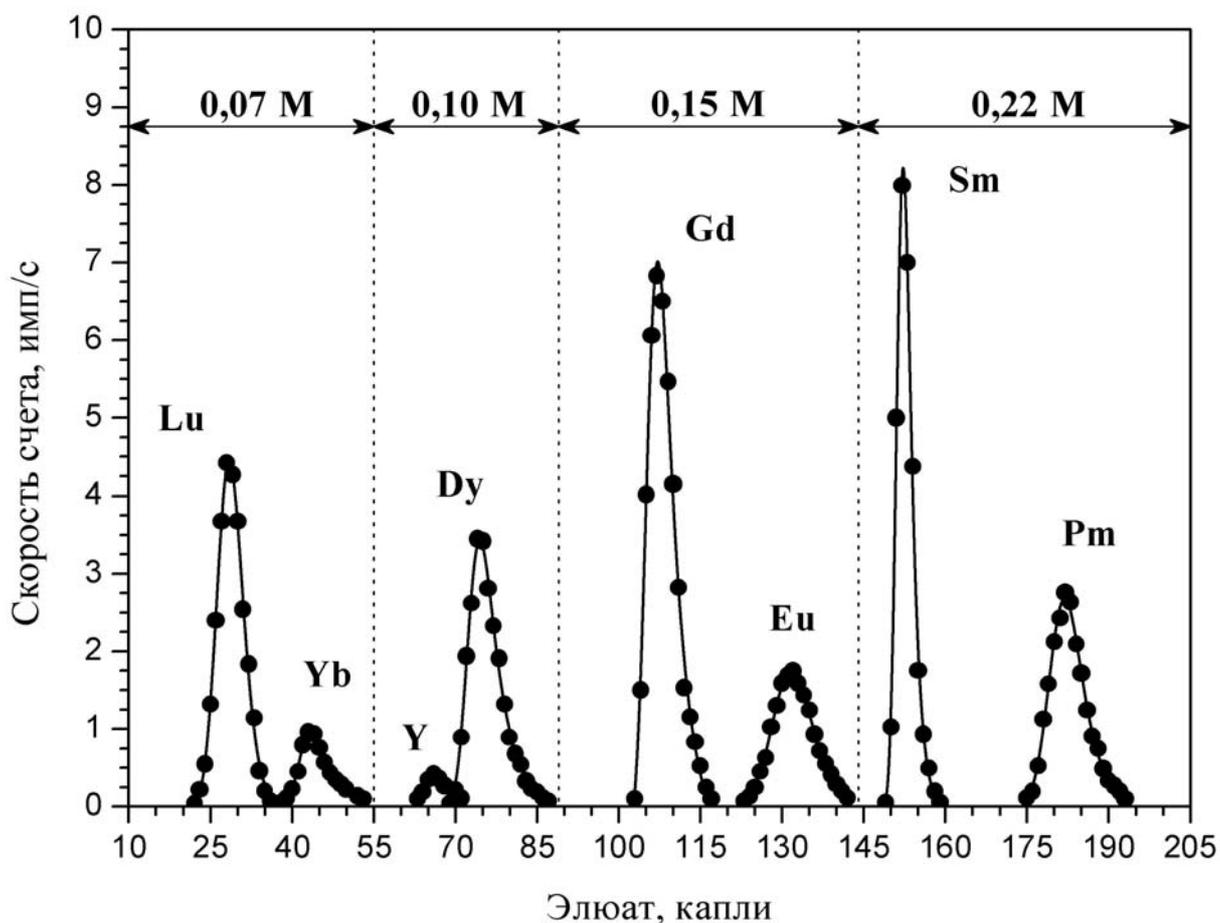


Рис. 12. Хроматограмма разделения редкоземельных элементов (элюирование растворами α -НИВ заданной концентрации).

Полученная хроматограмма свидетельствует об успешном разделении редкоземельных элементов. Следовательно, методика и условия проведения эксперимента позволяют приступить к поэлементному разделению актиноидной фракции.

2.3. Изучение фракции продуктов многоуклонных передач

в реакции $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca}$

2.3.1. Выделение фракции ТПЭ из сборника ядер отдачи

Эксперимент по химической идентификации элемента $_{105}\text{Db}$ как продукта распада элемента 115 в реакции $^{48}\text{Ca} + ^{243}\text{Am}$ был выполнен на ускорителе тяжелых ионов У-400 в Лаборатории ядерных реакций (ОИЯИ) в июне 2004 года. Принципиальная схема облучения показана на рис. 13.

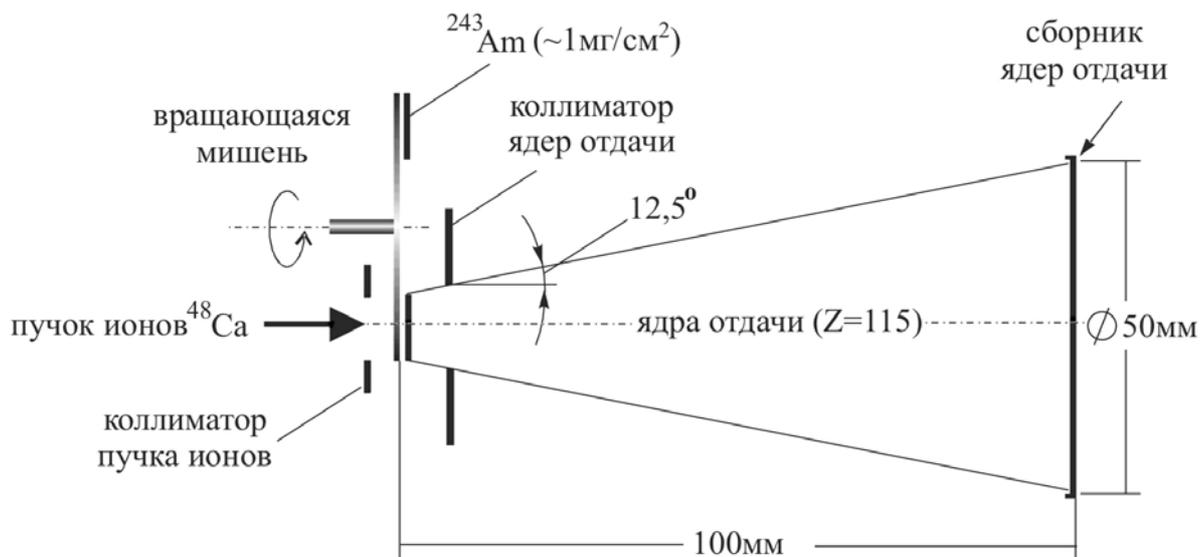


Рис. 13. Схема опыта [42].

Мишень в виде вращающегося диска из тонкой (1,5 мкм) титановой фольги общей площадью 32 см^2 с нанесенным на нее ^{243}Am в виде оксида толщиной $1,2 \text{ мг/см}^2$ (по ^{243}Am) облучалась ионами ^{48}Ca с энергией 247 МэВ (значение энергии дано на середине слоя мишени). Облучаемая площадь мишени ограничивалась коллиматором диаметром 10 мм. Средняя интенсивность пучка ионов, падающих на мишень, составляла $5 \cdot 10^{12}$ частиц/с. Ядра отдачи – продукты реакции, вылетающие из мишени, – проходили через второй коллиматор диаметром 12 мм (рис. 14), установленный на расстоянии 10 мм за мишенью, и 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.

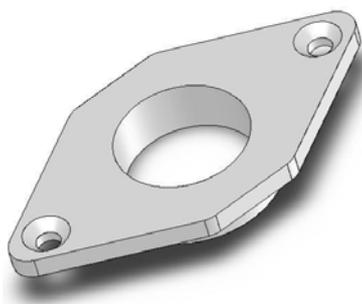


Рис. 14. Коллиматор ядер отдачи.

Продукты реакций многонуклонных передач вбивались в коллиматор ядер отдачи на глубину не более 4 мкм. Частично распыляемый под действием пучка ионов материал мишени ^{243}Am в виде аэрозоля осаждался на поверхности коллиматора. По окончании облучения коллиматор был снят с мишенного устройства и после выдержки в течение 6 месяцев был использован для выделения долгоживущих актиноидов. Последовательность операций выделения фракции ТПЭ выглядит следующим образом:

- 1) медную стружку массой 168 мг, полученную в результате обработки коллиматора ядер отдачи на микро-токарном станке (механически срезался верхний слой толщиной 7 – 10 мкм), растворили в 3 мл концентрированной азотной кислоты HNO_3 . Полученный азотно-кислый раствор представлял сложную многокомпонентную систему с высоким содержанием меди, продуктами реакции $^{48}\text{Ca} + \text{Cu}$, имплантированными осколками деления ^{243}Am , а также продуктами реакций передачи различного числа нуклонов от ядра-иона ^{48}Ca ядру-мишени ^{243}Am . Этот раствор перенесли в пластиковую пробирку для центрифугирования;
- 2) в раствор внесли отметчики (Dy, Gd, Eu, Sm, Pm) и 50 мкл раствора $\text{La}(\text{NO}_3)_3$ (700 мкг в пересчете на La), полученный раствор анализировали на γ -спектрометре;
- 3) нейтрализовали кислоту с помощью 7 мл NH_4OH для количественного соосаждения продуктов реакций с гидроксидом La, медь в виде аммиачного комплекса оставалась в растворе;
- 4) отделение осадка от раствора проводили центрифугированием в течение 7 минут с частотой вращения 4000 об/мин;
- 5) полученный осадок после декантации раствора растворили в 1,5 мл концентрированной HNO_3 и повторили операции нейтрализации и центрифугирования;
- 6) раствор, полученный в результате растворения осадка $\text{La}(\text{OH})_3$ в 0,25 мл 1 М HNO_3 , а также 0,25 мл 1 М HNO_3 , использованных для промывки пластиковой пробирки, измеряли на γ -детекторе и прово-

дили сорбцию на катионите Aminex A5 из 0,5 мл азотнокислого раствора.

На рис. 15 приведен спектр азотнокислого раствора после растворения медной стружки.

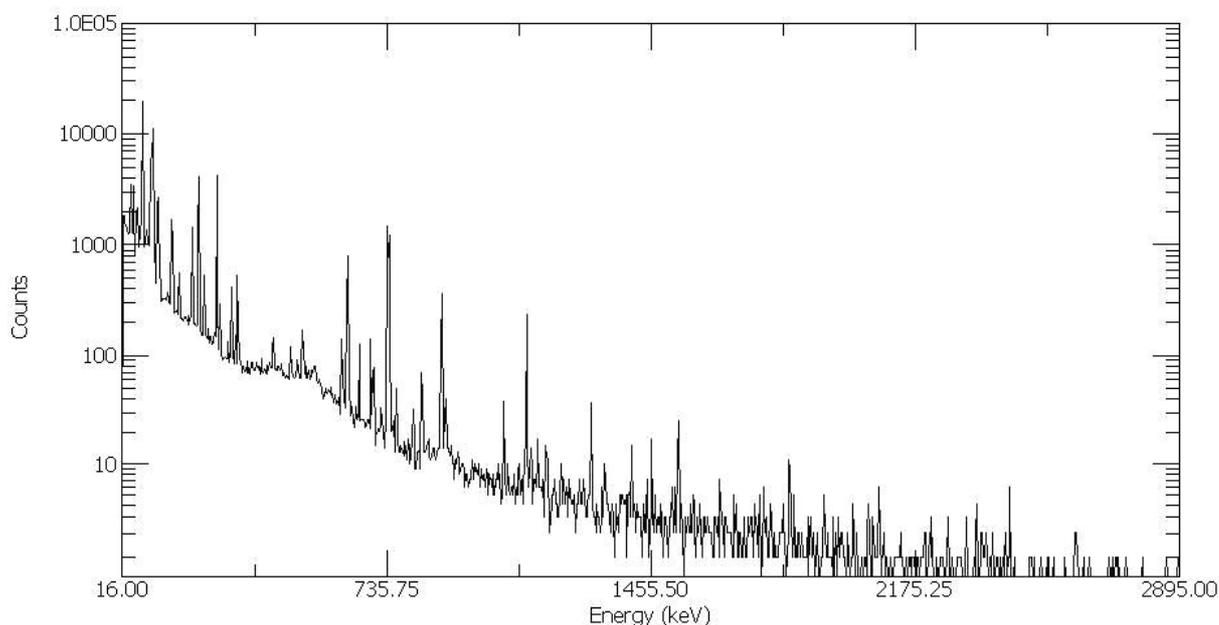


Рис. 15. Гамма-спектр раствора после растворения стружки.

В таблице 16 приведены результаты соосаждения радионуклидов с $\text{La}(\text{OH})_3$. Можно видеть, что степень выделения изотопов лантаноидов и ^{243}Am составляет от 80% (^{88}Y) до 98% (^{143}Pm). Аналогичное поведение можно ожидать и для актиноидов.

Таблица 16

Определение качества выделения элементов

№	N, имп		Процент выделения	E, кэВ	Изотопы
	До	После			
1	1651	1603	97,1	57,67	^{159}Dy
2	2108	1922	91,2	60,82	^{145}Sm
3	32650	30726	94,1	74,28	^{243}Am
4	3771	3673	97,4	115,24	^{146}Gd
5	6361	5823	91,5	227,90	^{239}Np
6	70	51	72,9	392,75	^{88}Zr
7	82	24	29,3	496,62	^{103}Ru
8	3475	3408	98,1	742,40	^{143}Pm
9	2839	2770	97,6	747,48	^{146}Eu
10	146	121	82,9	766,16	^{95}Nb
11	138	11	8,0	835,20	^{54}Mn
12	43	35	81,4	898,27	^{88}Y
13	696	631	90,7	1120,97	^{46}Sc

2.3.2. Разделение трансплутониевых элементов

Полученный после растворения осадка $\text{La}(\text{OH})_3$ 0,5 мл азотнокислого раствора переносили на колонку с Aminex A5. Элюирование проводили растворами α -НВ, ступенчато изменяя концентрацию, в соответствии с разработанной (гл. 2.2) методикой разделения лантаноидов. Хроматограмма разделения приведена на рис. 16.

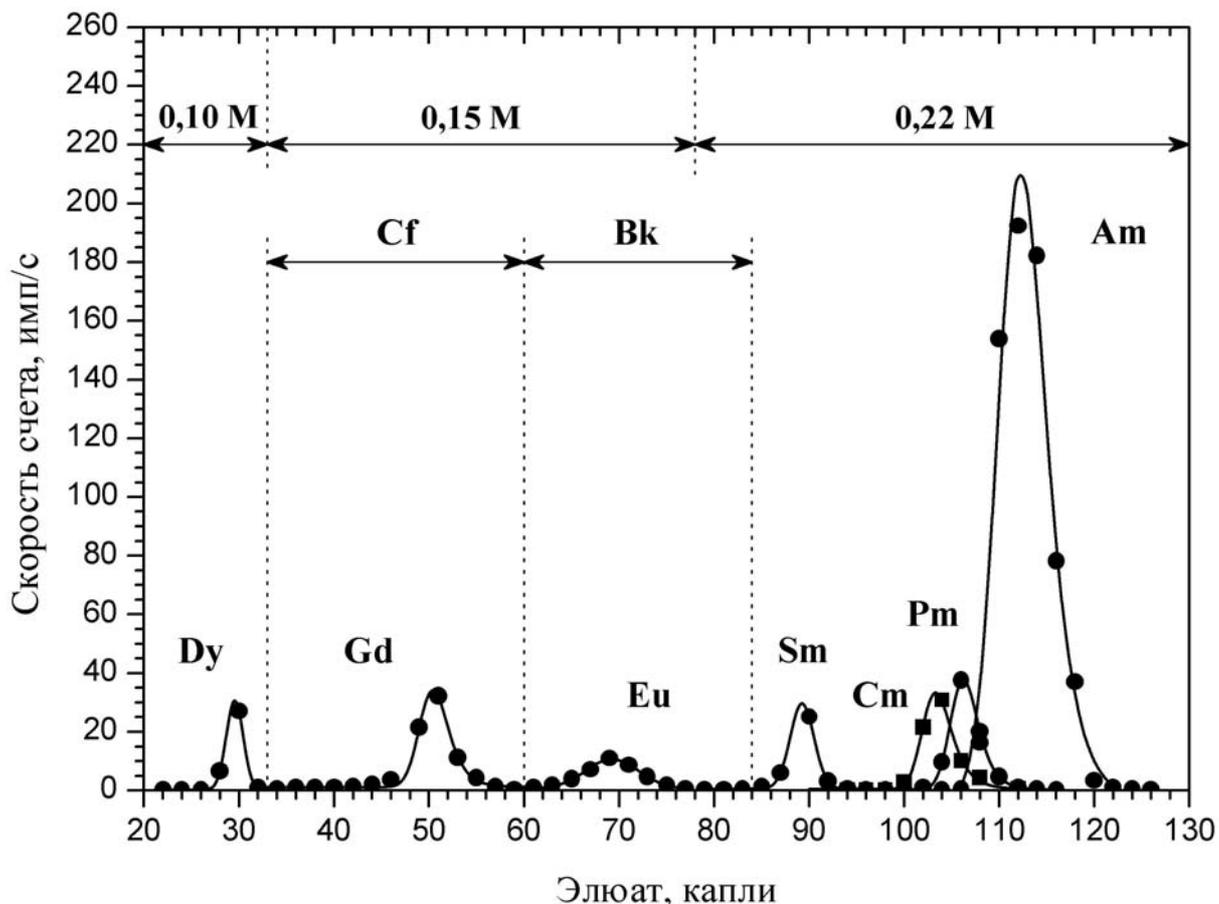


Рис. 16. Хроматограмма разделения актиноидов (элюирование растворами α -НВ заданной концентрации).

Данные для построения кривой вымывания Cm были получены с помощью α -спектрометра, так как низкоэнергетическое γ -излучение его изотопов находится за пределами рабочего интервала энергий γ -спектрометра. Изотоп америция ^{243}Am легко наблюдать с помощью γ -спектрометра ($E_\gamma = 74,67$ кэВ), что значительно облегчает задачу по набору данных для построения выходной кривой (отпадает необходимость приготовления тонких источников для α -спектрометрии). Для остальных актиноидов (Bk, Cf)

построить хроматограмму выделения в рамках поставленной задачи не представляется возможным ввиду малых количеств этих элементов, единственный путь образования которых – реакции многонуклонных передач. Таким образом, на хроматограмме для интересующих элементов в соответствии с их гадолиниевыми числами (рис. 5) были выделены области предполагаемого нахождения.

Коэффициент разделения пары элементов Am и Cm, рассчитанный по формуле 1, (с учетом свободного объема колонки, равного 5TH каплям) составил:

$$\alpha_{Am/Cm} = \frac{113-5}{103-5} = 1,10.$$

Для этой пары элементов значение полученного коэффициента разделения хуже литературных данных. Это можно объяснить тем, что условия разделения были оптимальны для лантаноидов, но не для актиноидов.

2.3.3. Идентификация ТПЭ

Известно, что изотопы одного и того же элемента химически идентичны. Кривые вымывания не отражают изотопный состав анализируемого образца. Идентификация изотопов трансплутониевых элементов выполнена с использованием α -спектрометра. В работе использовался Si(Au) поверхностно-барьерный детектор площадью 3 см² с разрешением 16 кэВ.

На рис. 17 приведен α -спектр америций-содержащей фракции.

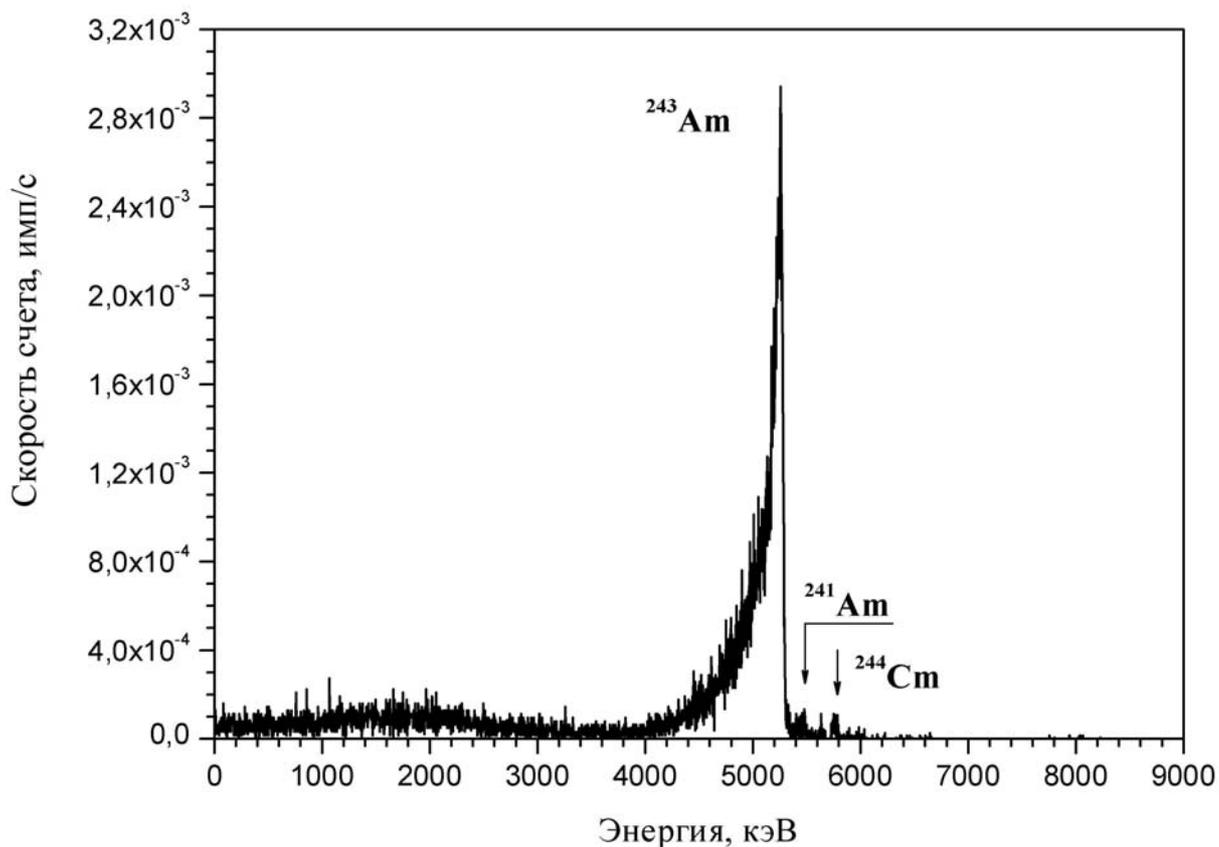


Рис. 17. Альфа-спектр америций-содержащей фракции (2 капли элюата в хвосте элюирования Am, рис. 16).

Видно, что помимо основного материала мишени (²⁴³Am) в пробе присутствует и ²⁴¹Am. Поскольку материал мишени был получен реакторным способом, то вполне закономерно присутствие другого изотопа америция.

На рис. 18 представлен α -спектр кюрий-содержащей фракции.

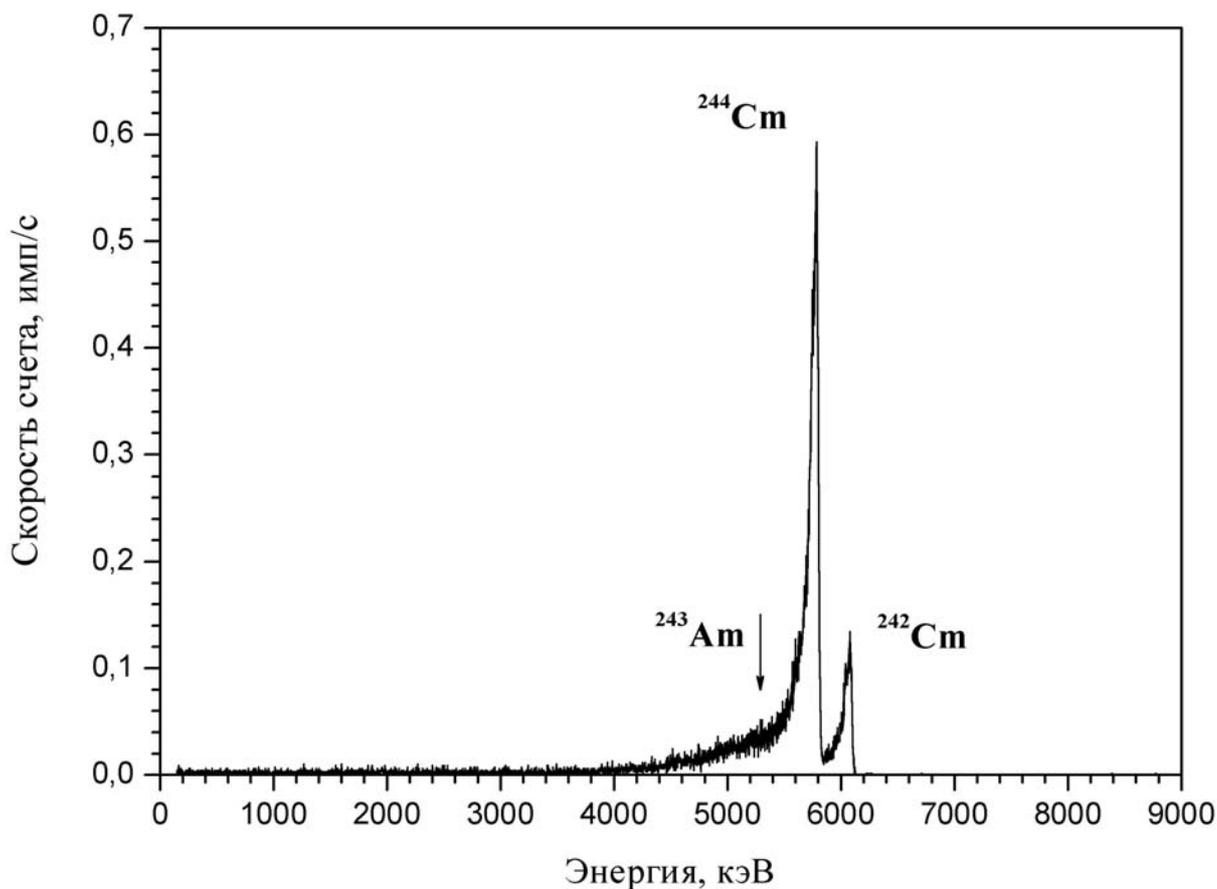


Рис. 18. Альфа-спектр кюрий-содержащей фракции (2 капли элюата в максимуме элюирования Cm, рис. 16).

Нетрудно видеть два четко выраженных пика, соответствующих изотопам кюрия. Хвост каждого из пиков (восходящая ветвь) обусловлен толщиной приготовленного препарата, который был получен в результате упаривания на стекле содержимого соответствующей тефлоновой подложки. Этим же объясняется отсутствие явного пика ^{243}Am , наличие которого в препарате вполне закономерно из-за невысокого коэффициента разделения пары Am – Cm.

В случае Вк содержимое всех тефлоновых подложек, отнесенных к берклиевой фракции, было использовано для приготовления одного препарата для α -спектрометрии.

Проводился поиск изотопов берклия с $T_{1/2}$ более 1 года из-за времени выдержки коллиматора. Такому критерию соответствуют лишь два из из-

вестных на сегодняшний день изотопа: $^{247}\text{Вк}$ и $^{249}\text{Вк}$.

Как видно из таблицы 17, вероятность регистрации на α -спектрометре $^{249}\text{Вк}$ (в отличие от $^{247}\text{Вк}$) мала, из-за невысокой доли α -распада его ядер. К тому же в пользу $^{247}\text{Вк}$ говорит тот факт, что при измерении берклиевой подложки не было зафиксировано ни одного акта спонтанного деления, присущего в этой паре изотопов только $^{249}\text{Вк}$.

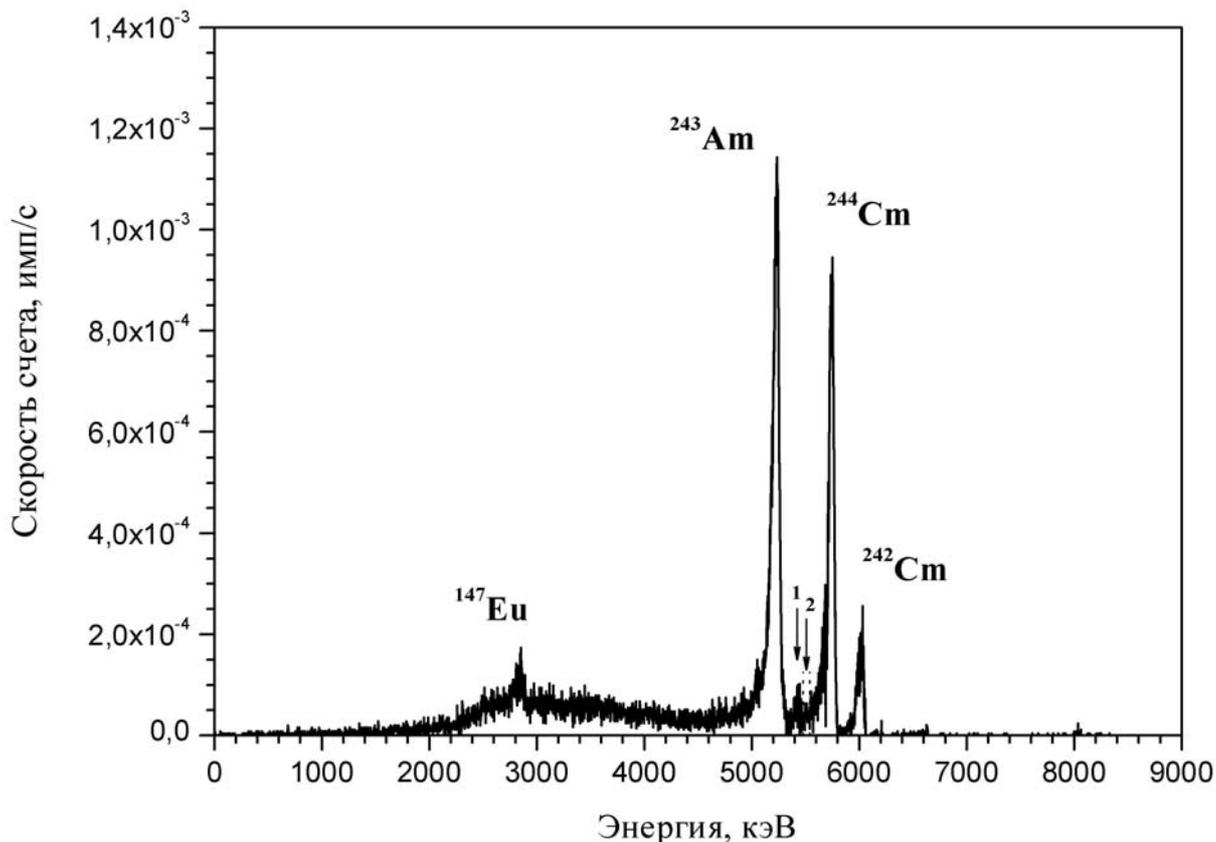


Рис. 19. Альфа-спектр берклиевой фракции.

1 – пик, соответствующий ^{241}Am ;

2 – область предполагаемого нахождения $^{247}\text{Вк}$.

Берклиевая фракция включала в себя сопутствующий редкоземельный элемент (отметчик) – европий Eu, один из изотопов которого (^{147}Eu) претерпевает α -распад.

Сам же пик, который можно отнести к $^{247}\text{Вк}$, идентифицировать не удалось из-за относительно высокого содержания изотопа $^{244}\text{См}$ в пробе. На рис. 19 показана предполагаемая область нахождения пика интересующего изотопа.

Содержимое всех тефлоновых подложек, отнесенных к калифорниевой фракции, также было использовано для приготовления одного препарата для α -спектрометрии. На рис. 20 приведен α -спектр калифорниевой фракции.

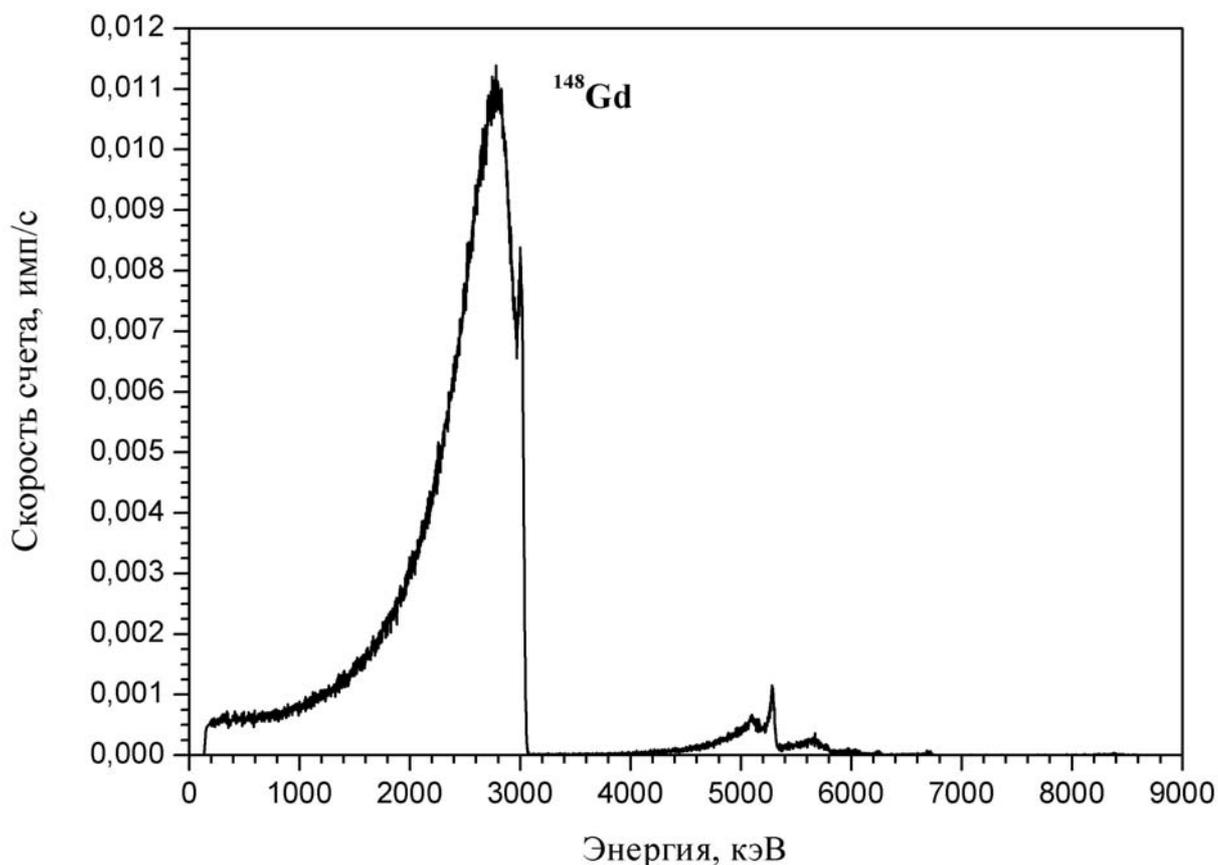


Рис. 20. Альфа-спектр калифорниевой фракции.

Наблюдаемое раздвоение пиков можно объяснить толщиной образца, подготовленного к измерению. Образец готовился упариванием содержимого калифорниевой фракции под лампой, в результате чего след имел форму кольца, толщина которого возможно существенным образом влияла на энергию регистрируемых детектором α -частиц. Следует также учесть, что небольшая доля активности равномерно распределилась внутри кольца, чем и объясняется наличие узких пиков наряду с сильно растянутыми.

Калифорниевая фракция включала в себя сопутствующий редкоземельный элемент (отметчик) – гадолиний Gd, один из изотопов которого (^{148}Gd) претерпевает α -распад.

Рассмотрим подробнее интересующую область спектра.

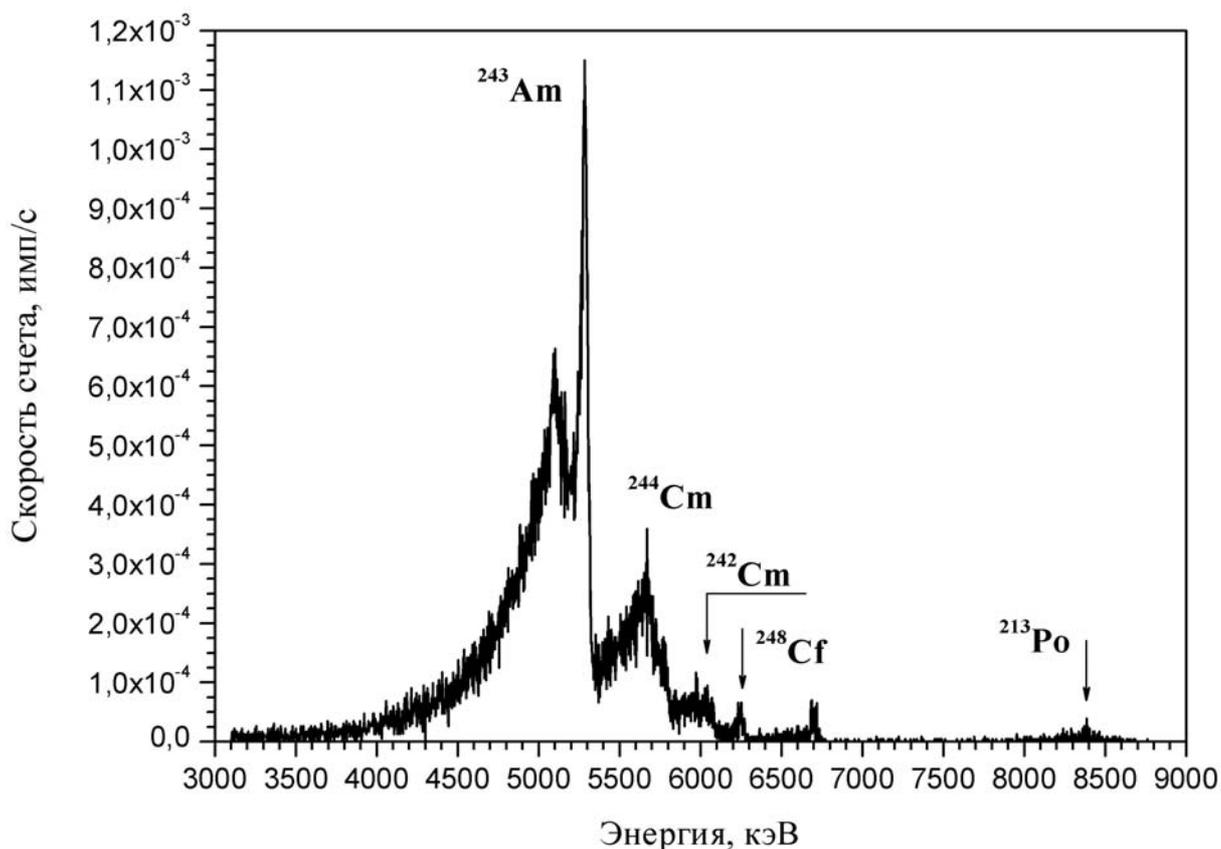


Рис. 21. Область α -спектра в интервале энергий от 3 до 9 МэВ.

Аналогичное объяснение можно дать раздвоению пиков и для этой части спектра.

Что касается наличия изотопов калифорния в пробе, то пики, соответствующие изотопам ^{249–252}Cf, выделить практически невозможно. Наиболее интенсивные линии этих изотопов отстоят не более чем на 10 кэВ от линий изотопов ^{242, 244}Cm или же находятся в хвосте этих изотопов.

Единственный из оставшихся возможных изотопов – ²⁴⁸Cf. Его наиболее интенсивная линия лежит правее линий изотопов ²⁴³Am и ^{242, 244}Cm. Также следует сказать о зарегистрированных актах спонтанного деления ~ 1 СД/ч, что тоже говорит в пользу изотопа ²⁴⁸Cf.

В таблице 17 приведена характеристика идентифицированных и вероятных α -активных изотопов.

Таблица 17

Характеристика идентифицированных и предполагаемых α -активных изотопов

Элемент	А	T _{1/2}	Доля α -распада, %	Наиболее интенсивные линии	
				E _{α} , кэВ	Интенсивность, %
⁶³ Eu	147	3,00.10 ⁵ лет	0,0022	2908	100
⁶⁴ Gd	148	74,6 г	100	3182,7	100
⁹⁵ Am	243	7370 лет	100	5275,3	87,4
				5233,3	11,0
⁹⁶ Cm	242	162,8 дн	100	6112,72	74,0
				6069,42	25,0
	243	29,1 г	99,71	5785,2	72,9
				5742,1	11,5
244	18,1 г	100	5804,82	76,4	
			5762,70	23,6	
⁹⁷ Bk	247	1380 лет	100	5531	45
				5710	17
	249	6,05.10 ⁴ лет	0,00145	5416,6	74,8
				5389,7	16,0
⁹⁸ Cf	248	333,5 дн	99,9971	6258	81,5
				6217	18,1
	249	351 г	100	5813,3	82,2
				5946,0	3,33
	250	13,08 г	99,923	6030,35	84,6
				5989,1	15,1
	251	898 лет	100	5679,3	35
5854				27	
252	2,645 г	96,908	6118,24	84,2	
			6075,77	15,7	

2.3.4. Оценка сечений образования ТПЭ

Число ядер любого изотопа элемента, образующегося в результате бомбардировки мишени, можно выразить следующим образом:

$$\frac{dN}{dt} = \Phi \cdot n \cdot \sigma - \lambda \cdot N.$$

$$N = \frac{\Phi \cdot n \cdot \sigma}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t})$$

или

$$A = \Phi \cdot n \cdot \sigma \cdot (1 - e^{-\lambda t}),$$

где A – активность, Бк;

Φ – средняя интенсивность пучка ионов, падающих на мишень,
($5 \cdot 10^{12}$ частиц/с);

n – концентрация ядер материнского вещества на 1 см^2 мишени;

σ – сечение образования продукта ядерной реакции, см^2 ;

λ – постоянная радиоактивного распада;

t – время бомбардировки мишени ($t = 14$ дн).

Величину n можно вычислить следующим образом:

$$n = \frac{m_{^{243}\text{Am}} \cdot N_{\text{Ав}}}{M},$$

где $m_{^{243}\text{Am}}$ – толщина слоя ^{243}Am – материала мишени ($1,2 \text{ мг/см}^2$);

$N_{\text{Ав}}$ – число Авогадро;

M – молекулярная масса ^{243}Am , г/моль.

Тогда

$$n = \frac{1,2 \cdot 10^{-3} \cdot 6,02 \cdot 10^{23}}{243} = 2,973 \cdot 10^{18} \frac{\text{ядер}}{\text{см}^2}.$$

С другой стороны активность изотопа можно рассчитать:

$$A = \frac{P}{I \cdot \varepsilon_{\text{дет}}},$$

где P – скорость счета, имп/с;

I – интенсивность соответствующей линии спектра, доли;

$\varepsilon_{\text{дет}}$ – эффективность детектора, доли.

Оценка сечений образования изотопов элемента ${}_{96}\text{Cm}$. В таблице 18 приведены основные характеристики радиоактивного препарата мишени.

Таблица 18

Паспорт радиоактивного препарата мишени

Наименование	Америций-243, оксид
Масса препарата, мг	20,8
Масса америция ${}^{243}\text{Am}$, мг	18,38
Массовая доля изотопа кюрий-244 в препарате, %	0,017
Отношение суммарной активности радионуклидов ${}^{242}\text{Cm}$ и ${}^{244}\text{Cm}$ к активности радионуклида ${}^{243}\text{Am}$	0,09

Введем индексы используемых величин:

м – мишень, к – коллиматор,

п – препарат, ф – фон.

Расчет активности изотопов кюрия, находившихся в мишени.

Найдем активность изотопа ${}^{244}\text{Cm}$.

$$A_M^{244\text{Cm}} = \lambda \cdot N = \lambda \cdot N_{\text{Ав}} \cdot \frac{m_{244\text{Cm}}}{M} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot N_{\text{Ав}} \cdot \frac{m_{\text{преп}} \cdot \omega}{M},$$

где $T_{1/2}$ – период полураспада изотопа ${}^{244}\text{Cm}$;

$m_{\text{преп}}$ – масса препарата;

ω – массовая доля изотопа кюрий-244 в препарате;

M – молекулярная масса ${}^{244}\text{Cm}$, г/моль.

$$A_M^{244\text{Cm}} = \frac{\ln 2}{18,1 \cdot 365 \cdot 24 \cdot 3600} \cdot 6,02 \cdot 10^{23} \cdot \frac{20,8 \cdot 10^{-3} \cdot 0,017 \cdot 10^{-2}}{244} = 10,594 \text{ МБк}.$$

Исходя из паспортных данных, активность изотопа ${}^{242}\text{Cm}$ равна:

$$A_M^{242\text{Cm}} = 0,09 \cdot A_M^{243\text{Am}} - A_M^{244\text{Cm}}, \quad \text{так как} \quad \frac{A_M^{242\text{Cm}} + A_M^{244\text{Cm}}}{A_M^{243\text{Am}}} = 0,09;$$

$$A_M^{243\text{Am}} = \frac{\ln 2}{7370 \cdot 365 \cdot 24 \cdot 3600} \cdot 6,02 \cdot 10^{23} \cdot \frac{18,38 \cdot 10^{-3}}{243} = 135,796 \text{ МБк}.$$

$$A_M^{242\text{Cm}} = 0,09 \cdot 135,796 - 10,594 = 1,628 \text{ МБк}.$$

Оценку сечения образования изотопов кюрия как продуктов реакции многонуклонных передач можно сделать, предположив, что соотношение между изотопами кюрия и америция останется неизменным и будет справедливо для коллиматора ядер отдачи.

В таблице 19 приведены данные, полученные при измерении америциевой фракции.

Таблица 19

Экспериментальные и расчетные данные относительно ^{243}Am

№	$N_{п+ф}$, имп	$t_{п+ф}$, с	$N_{ф}$, имп	$t_{ф}$, с	$P_{п+ф}$, имп/с	$P_{ф}$, имп/с	$P_{п}$, имп/с	ΔP_i	r_i
1	66 638	100	136	1 000	666,38	0,136	666,244	2,581	0,004

N_i – число зарегистрированных импульсов, имп;

t_i – время регистрации, с;

ΔP – статистическая погрешность;

r – средняя квадратичная погрешность.

$$P_{п} = P_{п+ф} - P_{ф}, \quad \Delta P = \sqrt{\frac{P_{п+ф}}{t_{п+ф}} + \frac{P_{ф}}{t_{ф}}}, \quad r = \frac{\Delta P}{P_{п}}.$$

В данном случае активность изотопа ^{243}Am может быть рассчитана ($I_{\gamma} = 68\%$, $\varepsilon_{дет} = 6,6\%$):

$$A_{к}^{243\text{Am}} = \frac{666,244}{0,68 \cdot 0,066} = 14845 \text{ Бк}, \quad r = 0,4 \%$$

$$A_{к}^{243\text{Am}} = 14845 \pm 58 \text{ Бк}.$$

Расчет активности изотопов кюрия, оказавшихся на коллиматоре ядеротдачи, (с учетом эффективности α -детектора $\varepsilon_{дет} = 8\%$) проводится аналогично. В таблице 20 приведены данные, полученные при измерении кюриевой фракции.

Таблица 20

Экспериментальные и расчетные данные относительно изотопов ^{242}Cm и ^{244}Cm

№	Изотоп	$N_{п+ф}$, имп	$t_{п+ф}$, с	$N_{ф}$, имп	$t_{ф}$, с	$P_{п+ф}$, имп/с	$P_{ф}$, имп/с	$P_{п}$, имп/с	ΔP_i	r_i
1	^{242}Cm	8 906	700	259	91 780	12,723	0,003	12,720	0,135	0,011
2	^{244}Cm	51 165	700	791	91 780	73,093	0,009	73,084	0,323	0,004

$$A_{к}^{242\text{Cm}} = \frac{12,720}{0,740 \cdot 0,08} = 215 \text{ Бк}, \quad r = 1,1 \%$$

$$A_{к}^{242\text{Cm}} = 215 \pm 2,3 \text{ Бк}.$$

$$A_{\kappa}^{244\text{Cm}} = \frac{73,084}{0,764 \cdot 0,08} = 1196 \text{ Бк}, \quad r = 0,4 \%$$

$$A_{\kappa}^{244\text{Cm}} = 1196 \pm 5,3 \text{ Бк}.$$

Активность каждого изотопа кюрия, находившегося на коллиматоре ядер отдачи, определяется как сумма активностей продуктов, образовавшихся в результате реакции многонуклонных передач ($A_{\text{ПРМП}}^{\text{Cm}}$), и частиц, нанесенных на коллиматор в ходе аэрозольного перемещения ($A_{\text{АЗП}}^{\text{Cm}}$):

$$A_{\kappa}^{\text{Cm}} = A_{\text{ПРМП}}^{\text{Cm}} + A_{\text{АЗП}}^{\text{Cm}}.$$

В свою очередь,

$$A_{\text{АЗП}}^{\text{Cm}} = A_{\text{М}}^{\text{Cm}} \cdot f,$$

где f – фактор аэрозольного перемещения.

Поскольку ^{243}Am , находившийся на коллиматоре, являлся материалом мишени и не мог участвовать в реакции многонуклонных передач, по этому изотопу и определим f :

$$f = \frac{A_{\kappa}^{243\text{Am}}}{A_{\text{М}}^{243\text{Am}}},$$

Таким образом,

$$A_{\text{ПРМП}}^{\text{Cm}} = A_{\kappa}^{\text{Cm}} - \frac{A_{\kappa}^{243\text{Am}}}{A_{\text{М}}^{243\text{Am}}} A_{\text{М}}^{\text{Cm}}.$$

Пусть z – коэффициент, учитывающий потери на всех стадиях обращения с образцом (примем, $z = 1,25$). Тогда с учетом того, что работы проводились с половиной коллиматора ядер отдачи, имеем:

$$A_{\text{ПРМП}}^{242\text{Cm}} < 1,25 \cdot 2 \cdot \left(215 - \frac{14845}{135,796 \cdot 10^6} \cdot 1,628 \cdot 10^6 \right),$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{242\text{Cm}} < 92 \text{ Бк}.$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{244\text{Cm}} < 1,25 \cdot 2 \cdot \left(1196 - \frac{148457}{135,796 \cdot 10^6} \cdot 10,594 \cdot 10^6 \right),$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{244\text{Cm}} < 94 \text{ Бк}.$$

Теперь следует учесть время, прошедшее с момента окончания бомбардировки мишени до начала измерений. Из закона радиоактивного распада известно, что:

$$A_{t'} = A_0 \cdot e^{-\lambda t'}$$

где $A_{t'}$ - активность к моменту времени t' , Бк;

A_0 – начальная активность образца, Бк;

t' – время выдержки ($t'_{\text{см}} = 216$ дн, $t'_{\text{сф}} = 219$ дн).

Таким образом,

$$A_{\text{ПРМП}}^{242\text{Cm}} < 92 \cdot \exp\left(\frac{\ln 2 \cdot 216}{162,8}\right),$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{242\text{Cm}} < 232 \text{ Бк}.$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{244\text{Cm}} < 94 \cdot \exp\left(\frac{\ln 2 \cdot 216}{18,1 \cdot 365}\right),$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{244\text{Cm}} < 96 \text{ Бк}.$$

Так как

$$\sigma = \frac{A}{\Phi \cdot n \cdot (1 - e^{-\lambda t})}, \text{ то}$$

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{242\text{Cm}} < \frac{232}{5 \cdot 10^{12} \cdot 2,973 \cdot 10^{18} \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{\ln 2 \cdot 14}{162,8}\right)\right) \cdot 10^{-24}},$$

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{242\text{Cm}} < 3 \cdot 10^{-4} \text{ б}.$$

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{244\text{Cm}} < \frac{96}{5 \cdot 10^{12} \cdot 2,973 \cdot 10^{18} \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{\ln 2 \cdot 14}{18,1 \cdot 365}\right)\right) \cdot 10^{-24}},$$

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{244\text{Cm}} < 4 \cdot 10^{-3} \text{ б}.$$

Оценка сечений образования изотопов элемента ${}_{97}\text{Bk}$. В таблице 21 приведены данные, полученные при измерении берклиевой фракции.

Таблица 21
Экспериментальные и расчетные данные относительно ${}^{247}\text{Bk}$

№	$N_{\text{п+ф}}$, имп	$t_{\text{п+ф}}$, с	$N_{\text{ф}}$, имп	$t_{\text{ф}}$, с	$R_{\text{п+ф}}$, имп/с	$R_{\text{ф}}$, имп/с	$R_{\text{п}}$, имп/с	ΔP	r
1	79	253 000	5	91 780	3,12E-04	5,45E-05	2,58E-04	4,28E-05	0,166

$$A_{\text{ПРМП}}^{247\text{Bk}} = \frac{2,58 \cdot 10^{-4}}{0,45 \cdot 0,08} = 7,2 \text{ мБк}, \quad r = 16,6 \%$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{247\text{Bk}} = 7,2 \pm 1,2 \text{ мБк}.$$

С учетом поправочных коэффициентов получаем:

$$A_{\text{ПРМП}}^{247\text{Bk}} < 1,25 \cdot 2 \cdot 7,2,$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{247\text{Bk}} < 17,9 \text{ мБк}.$$

Поскольку $T_{1/2} \gg t$, то активность за время выдержки практически не изменилась. Тогда

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{247\text{Bk}} < \frac{17,9 \cdot 10^{-3}}{5 \cdot 10^{12} \cdot 2,973 \cdot 10^{18} \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{\ln 2 \cdot 14}{1380 \cdot 365}\right)\right)} \cdot 10^{-24},$$

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{247\text{Bk}} < 6 \cdot 10^{-5} \text{ б}.$$

Оценка сечений образования изотопов элемента ${}_{98}\text{Cf}$. В таблице 22 приведены данные, полученные при измерении калифорниевой фракции.

Таблица 22
Экспериментальные и расчетные данные относительно ${}^{248}\text{Cf}$

№	$N_{\text{п+ф}}$, имп	$t_{\text{п+ф}}$, с	$N_{\text{ф}}$, имп	$t_{\text{ф}}$, с	$R_{\text{п+ф}}$, имп/с	$R_{\text{ф}}$, имп/с	$R_{\text{п}}$, имп/с	ΔP	r
1	406	232 200	54	82 000	1,75E-03	6,59E-04	1,09E-03	1,25E-04	0,114

$$A_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} = \frac{1,09 \cdot 10^{-3}}{0,815 \cdot 0,08} = 16,7 \text{ мБк}, \quad r = 11,4 \%$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} = 16,7 \pm 1,9 \text{ мБк}.$$

С учетом поправочных коэффициентов получаем:

$$A_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} < 1,25 \cdot 2 \cdot 16,7,$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} < 41,8 \text{ мБк}.$$

Теперь учтем время выдержки

$$A_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} < 41,8 \cdot \exp\left(\frac{\ln 2 \cdot 219}{333,5}\right),$$

$$A_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} < 65,9 \text{ мБк}.$$

Тогда

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} < \frac{65,9 \cdot 10^{-3}}{5 \cdot 10^{12} \cdot 2,973 \cdot 10^{18} \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{\ln 2 \cdot 14}{333,5}\right)\right)} \cdot 10^{-24},$$

$$\sigma_{\text{ПРМП}}^{248\text{Cf}} < 2 \cdot 10^{-7} \text{ б}.$$

В таблице 23 приведены верхние границы сечений образования актиноидов в реакции $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca}$.

Таблица 23

Оценка сечений образования продуктов реакций передачи

Ядро-мишень	Продукт реакции передачи	σ , мкб
$^{243}_{95}\text{Am}_{148}$	$^{242}_{96}\text{Cm}_{146}$	< 300
	$^{244}_{96}\text{Cm}_{148}$	< $4 \cdot 10^3$
	$^{247}_{97}\text{Bk}_{150}$	< 60
	$^{248}_{98}\text{Cf}_{150}$	< 0,2

ВЫВОДЫ

1. Разработана методика разделения соседних пар редкоземельных элементов, включающая сорбцию элементов на катионите Aminex A5 из азотнокислых растворов заданной концентрации с последующим элюированием растворами α -оксиизомаляной кислоты переменной концентрации (от 0,07 М до 0,22 М). Коэффициенты разделения пар элементов Lu – Yb, Gd – Eu, Eu – Sm и Sm – Pm составили соответственно 1,44, 1,43, 1,77 и 2,18.
2. Проведено выделение из материала коллиматора фракции актиноидных элементов – продуктов реакций многонуклонных передач, образовавшихся в реакции $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca}$, и с использованием указанной выше методики проведено разделение тяжелых актиноидных элементов.
3. На основании анализа данных эксперимента по химической идентификации элемента $_{105}\text{Db}$, а также полученных в настоящей работе результатов, оценены сечения образования спонтанно-делящихся актиноидов: $\sigma_{^{242}\text{Cm}} < 0,3 \text{ мб}$, $\sigma_{^{244}\text{Cm}} < 4 \text{ мб}$, $\sigma_{^{247}\text{Bk}} < 60 \text{ мкб}$, $\sigma_{^{248}\text{Cf}} < 0,2 \text{ мкб}$.

ПРИЛОЖЕНИЕ 1. ОХРАНА ТРУДА

Введение

Охрана труда – система законодательных актов, а также предупредительных и регламентирующих социально–экономических, организационных, технических, гигиенических и лечебно–профилактических мероприятий, средств и методов, направленных на обеспечение безопасных условий труда. Безопасные условия труда при проведении любого рода работ обеспечиваются соблюдением правил техники безопасности, производственной санитарии и пожаровзрывобезопасности, а также строгим следовании технологическому регламенту и рабочим инструкциям. Рассмотрению этих вопросов в приложении к представленной научно–исследовательской работе и посвящен данный раздел.

КРАТКАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ВЫПОЛНЯЕМОЙ РАБОТЫ

Опасные и вредные производственные факторы на основных стадиях выполнения дипломной работы

В ходе данной дипломной работы мы неизбежно сталкиваемся с различными вредными и опасными производственными факторами.

Опасный производственный фактор – это производственный фактор, воздействие которого на работающего в определенных условиях приводит к травме, острому отравлению или другому внезапному резкому ухудшению здоровья или смерти.

Вредный производственный фактор – это производственный фактор, воздействие которого на работающего в определенных условиях может привести к заболеванию, снижению работоспособности и (или) отрицательному влиянию на здоровье потомства. Причем в зависимости от количественной характеристики (уровня, концентрации и др.) и продолжительности воздействия вредный производственный фактор может стать опасным.

Классификация подразделяет опасные и вредные производственные факторы по природе воздействия на четыре класса:

- физические;
- химические;
- биологические;
- психофизиологические.

Один и тот же опасный и вредный производственный фактор по природе своего воздействия может относиться одновременно к различным группам, перечисленным выше. В данной научно–исследовательской работе присутствуют следующие опасные и вредные факторы:

- физические: ионизация воздуха; повышенный уровень ионизирующих излучений в рабочей зоне; повышенное значение напряжения в электрической цепи, замыкание которой может произойти через тело человека; сосуды и баллоны, работающие под давлением;
- химические: токсические, раздражающие, sensibilizing;
- психофизиологические: работа с радиоактивными веществами; длительность и монотонность эксперимента, что создает эмоциональную перегрузку; шум работающих приборов и установок;
- биологические: в данной работе отсутствуют.

Основные физико-химические, токсические и пожаровзрывоопасные свойства используемых в работе веществ [59, 60]

α -оксиизомаляная кислота (α -ИВ)

Физико-химические свойства.

Название	α -оксиизомаляная кислота
Формула	$(\text{CH}_3)_2\text{C}(\text{OH})\text{COOH}$
Состояние в обычных условиях	белые игольчатые кристаллы
Молекулярная масса, г/моль	104
Температура кипения, °С	212
Температура плавления, °С	78
Относительная плотность (вода = 1)	0,95
Растворимость в воде	легко растворима
Давление паров, кПа при 14,7 °С	0,13
Относительная плотность пара (воздух = 1)	3,0

Токсические свойства. Вследствие малой летучести оказывает только раздражающее действие на кожу, а при вдыхании в виде пыли – раздража-

ет дыхательные пути. Норматив предельно допустимой концентрации в воздухе рабочей зоны не установлен. Расчетное значение временно допустимой концентрации химического вещества в воздухе рабочей зоны ВДК_{р.з.} составляет 2,1 мг/м³.

Пожаровзрывоопасные свойства. Огнеопасно. В огне выделяют раздражающие или токсичные пары (или газы). При температуре выше 256 °С могут образоваться взрывоопасные смеси пар/воздух.

Температура вспышки, °С	256
Температура самовоспламенения, °С	481
Пределы взрываемости, объем. % в воздухе	2 – 9

Азотная кислота

Физико-химические свойства.

Название	азотная кислота
Формула	HNO ₃
Состояние в обычных условиях	бесцветная жидкость
Молекулярная масса, г/моль	63
Температура кипения, °С	82,6
Температура плавления, °С	-41,6
Относительная плотность (вода = 1)	1,4
Растворимость в воде	смешивается во всех соотношениях
Давление паров, кПа при 20 °С	6,4
Относительная плотность пара (воздух = 1)	2,2
Относительная плотность смеси пар/воздух при 20°С (воздух = 1)	1,07

Токсические свойства. Вещество оказывает разъедающее действие на глаза, кожу и дыхательные пути. Вдыхание паров может вызвать отек легких. Дым, содержащий оксиды азота, и туман чистой HNO₃ могут вызывать разрушение зубов, конъюнктивиты и поражения роговицы глаза. Действие паров резко усиливается при одновременном присутствии в воздухе различных аэрозолей дезинтеграции – SiO₂, NaCl, моторного и минерального масел. Практически HNO₃ легко образует в обычных условиях окси-

ды азота, однако ее пары приблизительно на 25 % токсичнее их. ПДК_{р.з.} составляет 5 мг/м³.

Пожаровзрывоопасные свойства. Не горюче, но способствует возгоранию других веществ. В огне выделяет раздражающие или токсичные пары (или газы). Риск пожара и взрыва при контакте со многими обычными органическими веществами.

Хлорид аммония

Физико-химические свойства.

Название	хлорид аммония
Формула	NH ₄ Cl
Состояние в обычных условиях	белые гигроскопичные кристаллы
Молекулярная масса, г/моль	53,5
Температура кипения, °С	520
Температура плавления (разлагается), °С	338
Плотность, г/см ³	1,5
Растворимость в воде, г/100 мл при 25°С	28,3
Давление паров, кПа при 160 °С	0,13

Токсические свойства. Общие отравления в производственных условиях исключены. Вещество токсично для водных организмов. Вещество раздражает глаза, кожу и дыхательные пути. ПДК_{р.з.} составляет 10 мг/м³.

Пожаровзрывоопасные свойства. Не горюче. В огне выделяют раздражающие или токсичные пары (или газы).

Аммиак

Физико-химические свойства.

Название	аммиак
Формула	NH ₃
Состояние в обычных условиях	бесцветная жидкость
Молекулярная масса, г/моль	17
Температура кипения, °С	-33
Температура плавления, °С	-78

Относительная плотность при 25 °С (вода = 1)	0,9
Коэффициент растворимости в воде при 20 °С	762,6
Давление паров, кПа при 26 °С	1013
Относительная плотность пара при 25 °С (воздух = 1)	0,59

Токсические свойства. Раздражает верхние дыхательные пути и глаза, оказывает разъедающее действие на кожу. Порог восприятия – 0,037 мг/л. При высоких концентрациях возбуждает центральную нервную систему и вызывает судороги. Изменения нервной системы в этих условиях вызваны недостатком O₂ в крови. ПДК_{р.з.} составляет 20 мг/м³.

Пожаровзрывоопасные свойства. Огнеопасно. Смеси паров аммиака с воздухом могут взрываться.

Температура самовоспламенения, °С	651
Пределы взрываемости, объем. % в воздухе	15 – 28

Азот

Физико-химические свойства.

Название	азот
Формула	N ₂
Состояние в обычных условиях	газ без цвета и запаха
Молекулярная масса, г/моль	28
Температура кипения, °С	-196
Температура плавления, °С	-210
Относительная плотность пара при 25 °С (воздух = 1)	0,97
Плотность жидкости при -196 °С, кг/л	0,808
Коэффициент растворимости в воде при 20 °С	0,014

Токсические свойства. При утечке может привести к гибели от удушья вследствие снижения содержания кислорода в воздухе в замкнутом пространстве. Жидкость может вызвать обморожение.

Пожаровзрывоопасные свойства. Не горюче. Нагревание приводит к повышению давления с риском взрыва.

Гелий

Физико-химические свойства.

Название	гелий
Формула	He
Состояние в обычных условиях	газ без цвета и запаха
Молекулярная масса, г/моль	4
Температура кипения, °С	-269
Температура плавления, °С	-272
Относительная плотность пара при 25 °С (воздух = 1)	0,14
Растворимость в воде, мл/100 мл при 20 °С	0,86

Токсические свойства. При применении под давлением – наркотик. При атмосферном давлении вреден постольку, поскольку своим присутствием понижает парциальное давление кислорода.

Пожаровзрывоопасные свойства. Не горюче. Нагревание приводит к повышению давления с риском взрыва.

Режим личной безопасности

В соответствии с требованием ГОСТ инженерно–технические работники, рабочие основных и вспомогательных цехов и служб предприятий и организаций независимо от характера и степени опасности производства, а также квалификации и стажа работы по данной профессии или в данной должности при поступлении на работу, а затем в соответствии с установленной периодичностью проходят следующие виды инструктажа по технике безопасности:

- 1) вводный;
- 2) первичный;
- 3) повторный;
- 4) внеплановый;
- 5) текущий.

Прикомандированные для выполнения соответствующих работ на экспериментальных установках и оборудовании групп, секторов, цехов, отделов направляются в данные подразделения приказом дирекции Института, завизированные руководством подразделения. Руководитель подразделения, в котором будет работать прикомандированный персонал (дипломни-

ки, стажеры, сотрудники других организаций и т. д.), обязан до начала работы провести вводный инструктаж по действующим инструкциям с записью в журнале инструктажа со всеми лицами, прикомандированными к подразделению. Объем инструктажа устанавливает руководитель подразделения.

Каждый вновь принятый на работу должен пройти первичный инструктаж по охране труда на рабочем месте. Повторный инструктаж персонал должен проходить на рабочем месте не реже двух раз в год, внеплановый – при изменении технологического процесса, нарушениях правил охраны труда и несчастных случаях. Данные инструктажи должны проводиться заведующим подразделением или лицом, назначенным им. Результаты инструктажей должны быть зафиксированы в соответствующих журналах, личной карточке инструктируемого, наряде–допуске или другой документации, свидетельствующей о допуске к самостоятельной работе. Ответственность за соблюдение правил техники безопасности возлагается на руководителя подразделения, где работает прикомандированный персонал.

До начала работы и периодически не реже одного раза в год должна проводиться проверка знаний персонала в области радиационной безопасности по программе, утвержденной администрацией Института и согласованной с профсоюзным комитетом.

При работе в лаборатории необходимо иметь следующие средства защиты: халат, резиновые перчатки, защитные очки. В лаборатории должны быть противогазы, защитные маски, диэлектрические резиновые коврики, инструмент с изолированными ручками, для оказания первой медицинской помощи – аптечка.

ПРОИЗВОДСТВЕННАЯ САНИТАРИЯ

Производственной санитарией называется система организационных, санитарно–гигиенических мероприятий, технических средств и методов, предотвращающих или уменьшающих воздействие на работающих вредных производственных факторов до значений, не превышающих допусти-

мье.

Соответствие размеров площади и объема помещения на одного работающего требованиям санитарных норм

Согласно санитарным нормам [61] на одного работающего человека должно приходиться не менее $4,5 \text{ м}^2$ площади и 15 м^3 объема помещения. Площадь лабораторного помещения составляет 24 м^2 , высота $3,6 \text{ м}$, следовательно, объем равен $86,4 \text{ м}^3$. В лабораторном помещении постоянно работают 3 человека. Таким образом, площадь и объем на одного работающего составляют 8 м^2 и $28,8 \text{ м}^3$, что соответствует нормам.

Помещение лаборатории оборудовано приточно-вытяжной вентиляцией. Работу с вредными веществами проводят в вытяжных шкафах. ЛВЖ и горючие вещества всегда имеются в лаборатории в небольших количествах, не создающих общей взрывоопасной концентрации. Работу с ними также ведут в вытяжных шкафах без применения открытого огня и электронагревательных приборов.

Организация работы с вредными веществами

При работе с токсичными веществами необходимо:

- все операции проводить в вытяжном шкафу;
- соблюдать меры личной и общественной безопасности: избегать попадания ядовитых веществ на кожу, вдыхания паров;
- применять средства индивидуальной защиты (очки, перчатки, противогаз);
- получать и хранить вредные вещества в обязательно подписанных стеклянных емкостях с притертыми пробками в специальном шкафу в отдельной комнате;
- переносить стеклянные емкости с вредными веществами со склада в лабораторию в специальных корзинах;
- запрещается сливать остатки вредных веществ в канализацию.

Организация работы с источниками ионизирующих излучений (ИИИ)

Электромагнитное или корпускулярное излучение (альфа-, бета-, гамма-, рентгеновское, нейтронное и др.), способное при взаимодействии с веществом прямо или косвенно создавать в нем заряженные атомы или молекулы – ионы называется ионизирующим. Радиоактивный распад ядер, использованных в дипломной работе, сопровождается в основном альфа-, бета- и гамма-излучением.

Вид, количественная и качественная характеристика ИИИ

Таблица 1

Характеристика использованных ИИИ [62]

Нуклид	МЗА, Бк	Вид излучения	Е, кэВ	T _{1/2}	Группа радиационной опасности
¹⁷⁷ Lu	10 ⁷	β ⁻	208,4	160,9 дн	Г
¹⁶⁹ Yb	10 ⁷	э. з.	197,9	32,0 дн	Г
¹⁵⁹ Dy	10 ⁶	э. з.	58,0	144,4 дн	Г
¹⁴⁶ Gd	10 ⁶	э. з.	114,7	48,3 дн	Г
¹⁵³ Gd	10 ⁷	э. з.	97,4	241,6 дн	Г
¹⁴⁶ Eu	10 ⁶	э. з.	747,2	4,6 дн	Г
¹⁵² Eu	10 ⁶	э. з.	243,0	13,3 г	Г
¹⁵⁵ Eu	10 ⁷	β ⁻	103,5	4,68 г	Г
²³⁹ Np	10 ⁷	β ⁻	106,1	2,4 дн	Г
²⁴³ Am	10 ³	α	74,7	7380 л	А
²⁴³ Cm	10 ⁴	α	277,6	28,5 л	Б
²⁴⁹ Bk	10 ⁶	β ⁻	124,0	320 дн	Г
²⁵² Cf	10 ⁴	α	6118,2	2,6 г	Б

Размещение и оборудование помещений, организация работ

1. Состав и площади помещений вновь строящихся или реконструируемых подразделений, требования к вентиляции, отоплению, водоснабжению, канализации и освещению помещений должны соответствовать требованиям СНиП.
2. Блок радионуклидного обеспечения должен быть рассчитан для работ II класса и иметь помещения для приемки радионуклидов, их хранения,

фасовки, дезактивации и мойки, сбора и хранения радиоактивных отходов.

3. В помещениях для работ II класса не должно быть ниши, выступов, не требуемых технологическим процессом и условиями размещения оборудования.
4. Планировка помещений и конструкция стационарных защитных ограждений и перекрытий должны обеспечивать снижение уровней мощностей доз на рабочих местах и на поверхностях наружных стен здания.
5. Система коммуникаций в строительных конструкциях должна исключать ослабление защиты.
6. Оборудование помещения специальной канализацией и вентиляцией должно проводиться в соответствии с требованиями ОСП и СНиП.
7. Помещения подразделений, где ведутся работы с радионуклидами, должны быть оснащены автономными системами приточной и вытяжной вентиляции и воздухоочистки. Кратность воздухообмена должна соответствовать требованиям СНиП.
8. Система вентиляции в помещениях для работ II класса должна быть спроектирована таким образом, чтобы воздух из помещений, где используются радионуклиды, не подвергался рециркуляции и не попадал в чистое помещение.
9. Устройства забора воздуха из атмосферы должны располагаться на расстоянии не менее 15 м по горизонтали от устройства выброса воздуха из помещения.
10. Фильтры для очистки воздуха должны быть установлены внутри помещения в местах, доступных для проведения их замены.
11. Вытяжная система шкафов и боксов для работы с радионуклидами должна быть изолирована от общей вентиляционной системы подразделения.
12. Рабочие места в подразделении должны быть организованы так, чтобы радиационно-опасные операции технологического процесса создавали минимальное облучение персонала и была возможность контроля за

местоположением источника излучения.

13. На каждом рабочем месте, где ведется работа с радионуклидами, должен быть контейнер для сбора твердых радиоактивных отходов.
14. В моечной для мытья перчаток, посуды и инструментов должны быть отдельные мойки. Для мытья инструментов должно быть не менее трех моек соответствующей маркировки.
15. Специализированная ЭВМ должна быть размещена в отдельном помещении.
16. Рабочие поверхности оборудования должны быть изготовлены из слабосорбирующих материалов или иметь покрытия, обладающие стойкостью по отношению к применяемым десорбирующим кислым и щелочным растворам.
17. Оборудование и мебель должны быть маркированы и закреплены за определенным рабочим местом. Передача оборудования, мебели и инструментария разрешается только по согласованию со службой радиационной безопасности и после дозиметрического контроля.

Виды защиты от вредного воздействия ионизирующих излучений

При выполнении данной работы для защиты от вредного воздействия ионизирующего излучения применялись следующие средства: халат, тапочки, резиновые перчатки, шапочка. Для контроля полученной дозы использовался индивидуальный дозиметр.

Сбор, удаление и обезвреживание твердых и жидких радиоактивных отходов

Образующиеся в ходе работы твердые (фильтровальная бумага, перчатки) и жидкие радиоактивные отходы собирались в отведенные для них емкости для транспортировки на Загорский полигон по захоронению радиоактивных отходов.

Меры индивидуальной защиты и личной гигиены

Средства защиты персонала, используемые в подразделениях, должны соответствовать требованиям ГОСТ 12.4.011–75.

В подразделениях должны применяться следующие коллективные средства защиты:

- стационарные защитные ограждения;
- защитные ширмы, экраны;
- защитно-технологическое оборудование;
- устройства для транспортирования и хранения источников излучения;
- защитное заземление оборудования;
- система вентиляции и очистки воздуха;
- устройства выдержки радиоактивных отходов;
- слабосорбирующие покрытия;
- знаки опасности.

При работе с источниками излучения персонал подразделения должен быть обеспечен средствами индивидуальной защиты в соответствии с действующими "Нормами бесплатной выдачи спецодежды, спецобуви и средств индивидуальной защиты для лиц, работающих с радиоактивными веществами и источниками ионизирующих излучений в учреждениях и предприятиях системы Министерства здравоохранения СССР".

Радиационный контроль

	Объем контроля	Периодичность контроля
1	Контроль индивидуальных доз внешнего облучения персонала	Контроль постоянный со снятием показаний в соответствии с методом измерения
2	Контроль индивидуальных доз внутреннего облучения персонала	По графику, согласованному с органами санитарно-эпидемиологической службы
3	Измерение мощности дозы излучения на рабочих местах, в смежных помещениях и прилегающих территориях	1 раз в год

	Объем контроля	Периодичность контроля
	ях	
4	Измерение уровней радиоактивной загрязненности рабочих поверхностей оборудования, транспортных средств, кожных покровов работающих	Ежедневно после окончания работ
5	Измерение концентрации радиоактивных аэрозолей в воздухе: рабочих помещений; смежных помещений	2 раза в квартал; 2 раза в год
6	Измерение радиоактивности сточных вод в баках и отстойниках, в коллекторе	Перед выбросом в канализацию
7	Контроль за радиоактивностью твердых и жидких отходов	Перед вывозом на захоронение
8	Контроль эффективности средств радиационной защиты	1 раз в 2 года
9	Контроль радиационной загрязненности фильтров вентиляционных систем	1 раз в 2 года
10	Контроль за выбросом радионуклидов в окружающую среду	По графику, согласованному с органами санитарно–эпидемиологической службы
11	Контроль за уровнем радиоактивного загрязнения внешней среды	По графику, согласованному с органами санитарно–эпидемиологической службы

Показатели метеорологических условий в помещении лаборатории

Метеорологические условия для рабочей зоны производственных помещений регламентируются ГОСТ 121 005–76 "Воздух рабочей зоны". Этот ГОСТ устанавливает оптимальные и допустимые микроклиматические условия в зависимости от характера производственных помещений, времени года, категории выполняемой работы (легкие, средней тяжести, тяжелые).

Работа в химической лаборатории относится к категории 1 – легкие физические работы. Для категории 1 предусматривается температура 20 – 23 °С (оптимальная), 19 – 25 °С (допустимая), скорость движения воздуха не более 0,2 м/с.

Температура в лаборатории измеряется обычным ртутным термометром – 20 °С.

Влажность воздуха определяется стационарным психрометром – 60%. Таким образом, метеорологические условия для работы соответствуют ГОСТ 121 005–76.

Вентиляция

Для удаления из лаборатории паров вредных веществ, избыточного тепла, влаги применяется местная вытяжная система вентиляции. Естественная вентиляция осуществляется через фрамуги, а искусственная – через вытяжные шкафы. В лаборатории функционирует вентиляционная установка производительностью 1050 м³/ч. Для работы с вредными, токсичными, летучими веществами установлен 1 вытяжной шкаф с закрывающимися проемами. Аварийной вентиляции нет.

Кратность обмена воздуха в лабораторном помещении:

$$K = Q/V,$$

где Q – производительность вентиляционной установки, м³/ч;

V – объем помещения, м³.

$$K = 1050 / 86,4 = 12,2 \text{ ч}^{-1}.$$

По санитарным нормам кратность обмена воздуха в помещении лаборатории должна быть не менее 5 ч⁻¹. Следовательно, вентиляционная установка обеспечивает нормальный обмен воздуха.

Освещение

Естественное освещение

В помещении химической лаборатории выполняется зрительная работа, относящая ее к помещениям 1–й группы по задачам зрительной работы (к ним относятся помещения, в которых производится различение объектов зрительной работы при фиксированном направлении линии зрения на рабочую поверхность).

Естественное освещение лаборатории осуществляется через один боковой оконный проем.

Значение КЕО, определенное с учетом характера зрительной работы,

равно 1,6 %.

Фактическая площадь светового проема составляет 6 м², что является недостаточным для обеспечения нормальной освещенности рабочего места. Потому используют совмещенное освещение.

Искусственное освещение

В лаборатории применяется общее искусственное освещение лампами накаливания. Кроме того, каждый вытяжной шкаф оборудован дополнительными светильниками.

Нормированная освещенность, согласно нормам, составляет 150 лк [63].

В лаборатории имеется 2 светильника, что не соответствует нормам.

Шум

Основным источником шума в лаборатории является вытяжной шкаф. Уровень шума не превышает допустимый.

Водоснабжение

Водоснабжение лаборатории горячей и холодной водой осуществляется за счет городских коммунальных сетей. Характер воды – хозяйственно-питьевая.

Канализация

Отработанные ЛВЖ и ГЖ следует собирать отдельно в герметично закрывающуюся тару, в которой их в конце рабочего дня передают на регенерацию или уничтожение. Запрещается выливать ЛВЖ и ГЖ в канализацию.

Отработанные кислоты и щелочи собирались в отдельную посуду и после нейтрализации выливались в канализацию. Запрещается выливать в канализацию концентрированные кислоты и щелочи, а также их растворы. Тару из под кислот и щелочей после освобождения необходимо промыть

водой, нейтрализующим раствором и окончательно дистиллированной водой.

Отопление

Для поддержания оптимальных метеорологических условий лаборатории отапливается центральным водяным отоплением.

ТЕХНИКА БЕЗОПАСНОСТИ

Техника безопасности – это система организационных мероприятий, технических средств и методов, предотвращающих воздействие на работающих опасных производственных факторов.

Безопасность при работе машин, аппаратов, установок, сосудов, работающих под давлением, специального оборудования

В работе для проведения ионообменного разделения элементов на хроматографической колонке со смолой Aminex A5 с размером частиц 13 ± 2 мкм использовались баллоны с сжатыми газами гелий и азот для создания оптимального избыточного давления.

Редуктор с установленными на нем манометрами перед началом работы были проверены на герметичность и испытаны на максимальное давление.

Электробезопасность

В лаборатории используется переменный ток напряжением 220 В и частотой 50 Гц. По опасности поражения людей током помещение лаборатории относится к первой категории без повышенной опасности током – это сухое, беспыльное помещение с нормальной температурой воздуха и изолирующими полами. Все токоведущие части и провода изолированы, допускаемая утечка тока через изоляцию 0,001 А.

В лаборатории используются нагревательные приборы закрытого типа. Допустимый уровень взрывозащиты электрических машин – без средств

взрывозащиты. Допустимый уровень взрывозащиты и степени защиты оболочки электрических аппаратов и приборов – без средств взрывозащиты. Уровень защиты светильников – без средств взрывозащиты. Для защиты от поражения электрическим током применяют заземление всех приборов на единый контур с сопротивлением ≤ 4 Ом.

ПОЖАРНАЯ ПРОФИЛАКТИКА

Категорирование производственных помещений по пожаровзрывоопасности

Категории помещений и зданий определяются на стадии проектирования в соответствии с действующими нормами НПБ 1–05–95 [64].

Для определения категории лабораторного помещения проводится расчет избыточного давления взрыва для паров легковоспламеняющихся и горючих жидкостей. В соответствии с паспортом лабораторного помещения лаборатория относится к категории В.

Классификация пожаровзрывоопасных зон в помещениях (по ПУЭ и в соответствии с паспортом лаборатории)

Лаборатория относится по зонам взрывоопасности к классу В–1б. К этому классу относятся зоны, расположенные в помещениях, в которой при нормальной эксплуатации взрывоопасные смеси горючих газов и паров с воздухом не образуются, а взрывы и пожары возможны только в результате аварий и неисправностей [65]. ЛВЖ и ГЖ имеются в зоне в небольших количествах, недостаточных для создания в зоне взрывоопасной смеси, превышающий 5 % объема помещения. Зоны относятся к невзрывоопасным, если работы ведутся в вытяжном шкафу.

В лаборатории используются нагревательные приборы закрытого типа. Все токоведущие части и провода изолированы.

Организация работы с горючими веществами

ЛВЖ и ГЖ (за исключением веществ, имеющих низкую температуру

кипения) должны храниться в лаборатории в толстостенных банках с притертыми пробками. Банки помещают в специальный металлический ящик с плотно закрывающейся крышкой, стенки и дно которого выложены асбестом. Ящик должен быть расположен на полу вдали от нагревательных приборов с удобным подходом к нему.

Емкость стеклянной посуды для ЛВЖ, не должна превышать 1л, при больших емкостях она должна быть снабжена герметичным металлическим футляром. Общий запас одновременно хранящихся в каждом помещении огнеопасных жидкостей не должен превышать сменную потребность и должен соответствовать санитарно–техническому паспорту лаборатории.

Все работы с ЛВЖ и ГЖ должны проводиться в вытяжном шкафу при работающей вентиляции. Вся электроаппаратура для нагревания ЛВЖ не должна давать искрение. Деревянные части вытяжных шкафов должна иметь огнестойкую пропитку. Запрещается выливать ГЖ в канализацию.

При случайных проливах огнеопасных жидкостей необходимо немедленно выключить все газовые горелки, нагревательные приборы, обесточить комнату общим рубильником, находящимся вне ее.

Химическая посуда, в которой хранятся ЛВЖ и ГЖ, должна иметь соответствующую надпись.

При работе с вредными веществами необходимо выполнять следующие требования:

- работать только в вытяжном шкафу;
- избегать попадания жидкостей на кожу и вдыхание паров;
- работать в перчатках и спецодежде, в случае необходимости пользоваться защитными очками и спецодеждой с противоголозом;
- хранить вредные вещества в склянках с притертыми крышками в вытяжном шкафу.

Защита от статического электричества

В качестве защиты от статического электричества используется зануление, при котором все токоведущие части присоединяются к неоднократно заземленному нулевому проводу. Такую защиту применяют и от атмосферного электричества. Для защиты от поражения электрическим током применяют зануление всех приборов на единый контур с сопротивлением ≤ 4 Ом.

Средства пожаротушения

Для тушения пожаров используются следующие средства:

- внутренний пожарный кран с рукавом;
- углекислотные огнетушители ОУ–2 (2 шт.);
- асбестовое полотно;
- песок (в специальных ящиках).

Пол в лаборатории выложен из негорючего материала. Стены и перегородки из железобетонных конструкций. Поверхность лабораторных столов облицована керамической плиткой. Для организации оповещения о пожаре в лаборатории имеются пожарная сигнализация и телефонная связь.

ПРИЛОЖЕНИЕ 2. ЭКОНОМИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Введение

Результаты дипломной работы представляют интерес, поскольку данная работа является подготовительным этапом в области выделения и разделения актиноидных элементов в реакциях передачи, в последнее время используемых для синтеза сверхтяжелых элементов.

В 2002 – 2004 годах в Дубне были проведены эксперименты по синтезу изотопов элементов 114 и 116 с использованием в качестве мишеней более легких изотопов плутония и кюрия (^{242}Pu , ^{245}Cm), а также изотопов новых элементов 115 и 118 в реакциях $^{243}\text{Am} (^{48}\text{Ca}, xn)$ и $^{249}\text{Cf} (^{48}\text{Ca}, xn)$.

В представленной дипломной работе для выделения и поэлементного разделения актиноидной фракции использовалась жидкостная ионообменная колоночная хроматография. Одним из перспективных вариантов усовершенствования процесса разделения считается высокоэффективная жидкостная хроматография (ВЭЖХ).

Увеличения порядковых номеров атомов элементов, используемых в качестве мишеней и налетающих частиц, вызывают интерес как с точки зрения синтеза трансактиноидов, так и получения новых изотопов тяжелых актиноидов. Наиболее вероятными продуктами реакций передачи являются атомы элементов, находящиеся в непосредственной близости в Периодической таблице Д. И. Менделеева с атомом мишени.

Данная дипломная работа посвящена определению сечений образования актиноидов в реакции $^{243}\text{Am} + ^{48}\text{Ca}$. Основные задачи по выполнению этой работы сводятся к следующему:

- отработка методики разделения лантаноидов, являющихся аналогами актиноидов;
- выделение актиноидной фракции с коллиматора;
- поэлементное разделение актиноидов с помощью α -оксиизомаляной кислоты (α -НИВ);

- оценка сечений образования актиноидов, образовавшихся в результате реакций передачи.

Сбор и изучение информации о реакциях передачи позволят выявить закономерности, присущие этому виду превращений, что в свою очередь является как интересной самостоятельной задачей, так и недостающим звеном ряда исследований, направленных на синтез сверхтяжелых элементов.

РАСЧЕТ ЗАТРАТ НА ДИПЛОМНУЮ РАБОТУ

Расчет материальных затрат

Расчет затрат на основные и вспомогательные материалы, реактивы и топливо, израсходованные при выполнении дипломной работы, определяют следующим образом:

$$C_m = \sum_{i=1}^n P_i \cdot C_i,$$

где P_i – количество израсходованного i -го материального ресурса;

C_i – планово-заготовительная цена единицы i -го вида материальных ресурсов, руб./ед.;

$i = 1, 2, \dots, n$ – виды ресурсов.

Таблица 1

Расчет материальных затрат

№	Наименование	Единицы измерения	Количество	Цена, руб/ед	Сумма, руб	Удельный вес затрат, %
1	Азотная кислота (63 %)	кг	0,015	59,06	0,89	$3,91 \cdot 10^{-3}$
2	α -НВ	г	10,8	51,03	551,12	2,43
3	Аммиак	л	0,002	35,53	0,07	$3,13 \cdot 10^{-4}$
4	Хлорид аммония	кг	0,007	61,50	0,43	$1,90 \cdot 10^{-3}$
5	Гелий	м ³	0,01	1 000,00	10,00	0,04
6	Азот	м ³	0,1	300,00	30,00	0,13
7	Ионообменная смола Aminex A5	г	0,7	30 000,00	21 000,00	92,62
	<i>Итого:</i>				<i>21 592,51</i>	<i>95,24</i>
8	Транспортно-заготовительные издержки (5% от суммы расходов)				1 079,63	4,76
	Итого:				22 672,14	100,00

Расчет энергетических затрат

Затраты на электроэнергию составляют:

$$C_{\text{эл/эн}} = \sum_{i=1}^n P_i \cdot \text{Ц} = \sum_{i=1}^n M_i \cdot K \cdot T_i \cdot \text{Ц},$$

где P_i – расход электроэнергии на i -ом виде оборудования, кВт·ч;

M_i – паспортная мощность электрооборудования, кВт;

K – коэффициент использования мощности, $K = 0,8 - 0,9$;

T_i – время работы электрооборудования, ч;

Ц – цена 1 кВт·ч, руб/кВт·ч.

Таблица 2

Расчет энергетических затрат

№	Наименование	Доля затрат на дипломную работу	Номинальная мощность единицы оборудования, кВт	Суммарная потребляемая мощность, кВт	Коэффициент использования мощности	Время работы оборудования, ч	Цена за 1 кВт·ч, руб/кВт·ч	Сумма затрат, руб
1	Ускоритель У-400	0,005	20 000	100	0,8	336	0,95	25 536,00
2	Весы аналитические	1	0,01	0,01	0,8	0,7	0,95	0,01
3	Дистиллятор	1	3	3	0,8	25	0,95	57,00
4	Вытяжной шкаф	1	1	1	0,8	480	0,95	364,80
5	pH-метр	1	0,01	0,01	0,8	10	0,95	0,08
6	Гамма-спектрометр	1	0,5	0,5	0,8	30	0,95	11,40
Итого:								25 969,28

Расчет затрат на воду

Затраты на воду определяют, исходя из израсходованного количества и цены.

Таблица 3

Расчет затрат на воду

№	Наименование	Израсходованное количество, м ³	Цена, руб/м ³	Сумма затрат, руб
1	Вода холодная	5	10,00	50,00
2	Вода горячая	3	20,00	60,00
3	Вода дистиллированная	0,01	5 000,00	50,00
	Итого:			160,00

Затраты на заработную плату с отчислениями

Заработная плата состоит из:

- заработной платы исполнителя $Z_{и}$;
- заработной платы руководителя $Z_{рук}$;
- консультантов.

Заработная плата исполнителя рассчитывается по формуле:

$$Z_{и} = C_{м} \cdot п,$$

где $C_{м}$ – месячная стипендия, руб/мес;

$п$ – количество месяцев выполнения дипломной работы, мес.

$$Z_{и} = 900 \cdot 5 = 4500 \text{ руб.}$$

Заработная плата руководителя рассчитывается по формуле:

$$Z_{рук} = 35 \cdot T,$$

где 35 – общая нагрузка по руководству дипломной работой, ч;

T – часовая оплата труда руководителей на момент расчетов, руб/ч;

$$Z_{рук} = 35 \cdot 100 = 3\,500,00 \text{ руб.}$$

Заработная плата консультантов по гражданской работе, охране труда, промышленной экологии и экономике рассчитывают по формуле:

$$Z_{конс} = 0,5 \cdot T \cdot п \cdot n,$$

где 0,5 – общая нагрузка по руководству дипломной работой, ч/мес;

T – часовая оплата труда руководителей на момент расчетов, руб/ч;

п – количество месяцев руководства дипломной работой, мес;

п – количество консультантов.

$$Z_{\text{конс}} = 0,5 \cdot 90,00 \cdot 5 \cdot 4 = 900,00 \text{ руб.}$$

Основная заработная плата рассчитывается по формуле:

$$Z_{\text{осн}} = Z_{\text{и}} + Z_{\text{рук}} + Z_{\text{конс}},$$
$$Z_{\text{осн}} = 4\,500,00 + 3\,500,00 + 900,00 = 8\,900,00 \text{ руб.}$$

Общая заработная плата рассчитывается как сумма основной и дополнительной заработных плат. Исходя из того, что дополнительная заработная плата составляет 20 % от основной, имеем:

$$Z_{\text{общ}} = Z_{\text{осн}} + 0,2 \cdot Z_{\text{осн}} = 1,2 \cdot Z_{\text{осн}}.$$

$$Z_{\text{общ}} = 1,2 \cdot 8\,900,00 = 10\,680,00 \text{ руб.}$$

Единый социальный налог для работников института принимается равным 35,6 % от общей заработной платы:

$$\text{ЕСН} = 0,356 \cdot Z_{\text{общ}}.$$

$$\text{ЕСН} = 0,356 \cdot 10\,680,00 = 3\,802,08 \text{ руб.}$$

Заработная плата с учетом налога составляет:

$$Z_{\text{общ-нал}} = Z_{\text{общ}} - \text{ЕСН}.$$

$$Z_{\text{общ-нал}} = 10\,680,00 - 3\,802,08 = 6\,877,92 \text{ руб.}$$

Затраты на стеклянную посуду и стеклянные приборы

Таблица 4

Затраты на стеклянную посуду и стеклянные приборы

№	Наименование	Количество	Цена за единицу, руб/ед	Сумма, руб.
1	Колба круглодонная	10	20,00	200,00
2	Воронка	1	10,00	10,00
3	Пипетка	5	1,00	5,00
4	Пробирка	10	1,20	12,00
5	Стакан	3	8,30	24,90
6	Колонка хроматографическая	2	50,00	100,00
	Итого:			351,90

Амортизационные отчисления

Амортизационные отчисления $C_{ам}$ определяют, исходя из стоимости используемого оборудования и приборов, годовых норм амортизации и времени их использования.

$$C_{ам} = \sum_{i=1}^n \frac{\Phi_i \cdot N_{a_i} \cdot T_i}{100 \cdot 12},$$

где Φ_i – стоимость используемых приборов, руб;

N_{a_i} – годовая норма амортизационных отчислений;

T_i – время работы приборов и оборудования в течение срока выполнения дипломной работы, мес.

Таблица 5

Амортизационные отчисления

№	Наименование	Стоимость, руб.	Время работы, мес.	N_{a_i} , %	Сумма амортизационных отчислений, руб.
1	Ускоритель У–400	21 000 000,00	0,5	2	17 500,00
2	Весы аналитические	50 661,02	0,1	15	63,33
3	Дистиллятор	9 025,00	5	20	752,08
4	Вытяжной шкаф	18 653,48	5	8	621,78
5	pH–метр	41 206,20	0,1	15	51,51
6	Гамма–спектрометр	119 014,00	5	15	7 438,38
7	Автоматическая пипетка (3 шт.)	27 000,00	5	20	2 250,00
8	Стеклопосуда	351,90	5	30	43,99
	Итого:				28 721,06

Накладные расходы

Накладные расходы C_n , включающие затраты на страхование учебно-вспомогательного и административно–управленческого персонала, отопление, освещение, вентиляцию, содержание библиотеки, общежития, ремонт зданий и прочие хозяйственные расходы, принимают в размере 70 % от суммы заработной платы с учетом единого социального налога:

$$C_n = 0,7 \cdot Z_{общ-нал}$$

$$C_n = 0,7 \cdot 6 877,92 = 4 814,54 \text{ руб.}$$

Смета затрат на проведение дипломной работы

Таблица 6

Смета затрат на проведение дипломной работы

№	Наименование статей затрат	Сумма, руб.	Процент затрат от общей суммы, %
1	Затраты на сырье, материалы, реактивы и транспортные расходы	22 672,14	23,77
2	Энергетические затраты по видам:		
	а) электроэнергия	25 969,28	27,22
	б) вода	160,00	0,17
	<i>итого:</i>	26 129,28	27,39
3	Основная заработная плата:		
	а) исполнителя	4 500,00	4,72
	б) руководителя	3 500,00	3,67
	в) консультантов	900,00	0,94
	<i>итого:</i>	8 900,00	9,33
4	ЕСН	3 802,08	3,99
5	Затраты на стеклянные приборы и посуду	351,90	0,37
6	Амортизационные отчисления:		
	а) посуда	43,99	0,05
	б) приборы и оборудование	28 677,08	30,06
	<i>итого:</i>	28 721,06	30,11
7	Накладные расходы	4 814,54	5,05
	Итого:	95 391,00	100,00

Видно, что наибольшая доля затрат приходится на амортизационные отчисления на приборы и оборудование (30,06 %).

В целом представленная дипломная работа характеризуется как энерго- (27,39 %) и материалоемкая (23,77 %).

Заключение

В результате выполнения данной дипломной работы была разработана методика разделения лантаноидов и актиноидов, что позволит в будущем в последующих экспериментах проводить подобные операции с минимальными потерями исходных веществ и минимальными затратами времени. Последнее особенно важно, поскольку ожидаемые периоды полураспада еще не открытых нейтронно–избыточных изотопов тяжелых актиноидов лежат в интервале от нескольких миллисекунд до нескольких часов. Работа также представляет интерес, поскольку выделение и поэлементное разделение в жидкой фазе продуктов реакций передач ранее не проводились.

На данном этапе развития фундаментальная ядерная физика является весьма энергоемким направлением, поэтому параллельно с главной задачей – синтез трансактиноидов – решается ряд других, направленных, в частности, на повышение эффективности использования ускорительной техники и, следовательно, приводящих к экономии денежных средств. Достижение поставленных целей каким–либо иным, экономически оправданным способом, не представляется возможным. Тем не менее уникальность и значимость выполняемых экспериментов для науки и техники невозможно переоценить.

Эксперимент, проведенный в этом году в Дубне, задачей которого являлся синтез 115 элемента по реакции $^{243}\text{Am} (^{48}\text{Ca}, xn)$, признан успешным. Именно в ходе его выполнения появилась возможность изучения реакций передач, в которых участвуют ядра атомов мишени и налетающих частиц.

ПРИЛОЖЕНИЕ 3. ЭКОЛОГИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Введение

Проблемы взаимодействия природы и человека в условиях ускоренного научно-технического процесса в последние годы привлекает всеобщее внимание. И это закономерно. Природа – целостная система с множеством сбалансированных связей. Нарушение этих связей приводит к изменениям в установившихся в природе круговоротах веществ и энергии. В настоящий момент в результате большого количества отходов промышленного, сельскохозяйственного и бытового происхождения нарушаются условия, позволявшие в прошлом успешно справляться с утилизацией отходов с помощью бактерий, воды, воздуха, воздействия солнечного света.

В результате производственной деятельности создаются принципиально новые продукты и одновременно отходы, в ряде случаев не встречающиеся в природе. Многие продукты производят в природе необратимые изменения, приводят к резкому нарушению круговорота веществ.

Выбросы в биосферу оказывают вредное воздействие на ландшафты, животный и растительный миры, на человека.

В атмосферу выбрасываются огромные массы пыли, кислых газов (диоксид углерода, соединения серы, оксиды азота и другие), металлов и их оксидов, различных органических веществ. В результате загрязнения атмосферы в ряде городов образуется "смог", создаются трудные условия жизни для людей и угроза сохранности памятников и технических сооружений. Состояние атмосферы значительно ухудшается под действием поступающих в нее радиоактивных, электромагнитных и акустических излучений.

Гидросфера загрязняется отбросами производственной деятельности, в том числе многими продуктами химической промышленности и нефтепереработки, выбросами городского и сельского хозяйства. Выбросы вредных веществ в водоемы наносят ущерб рыбному хозяйству.

В результате воздействия ряда веществ, выбрасываемых в окружающую среду, у человека появляются новые и осложняются старые заболева-

ния – генетические, токсические, аллергические, респираторные, эндокринные и другие.

В связи с большим загрязнением биосферы во многих странах принимаются меры по созданию определенных ограничений на выброс вредных веществ промышленными предприятиями (ПДК). Под ПДК понимают такую концентрацию химического соединения, которая при ежедневном воздействии на человека в течение длительного времени не вызывает в его организме каких–либо патологических изменений или заболеваний.

В целях защиты окружающей среды работа промышленности должна быть организована таким образом, чтобы образующиеся отходы превращались в новые продукты (замкнутый цикл производства).

Поэтому можно выделить следующие задачи химической промышленности по охране окружающей среды:

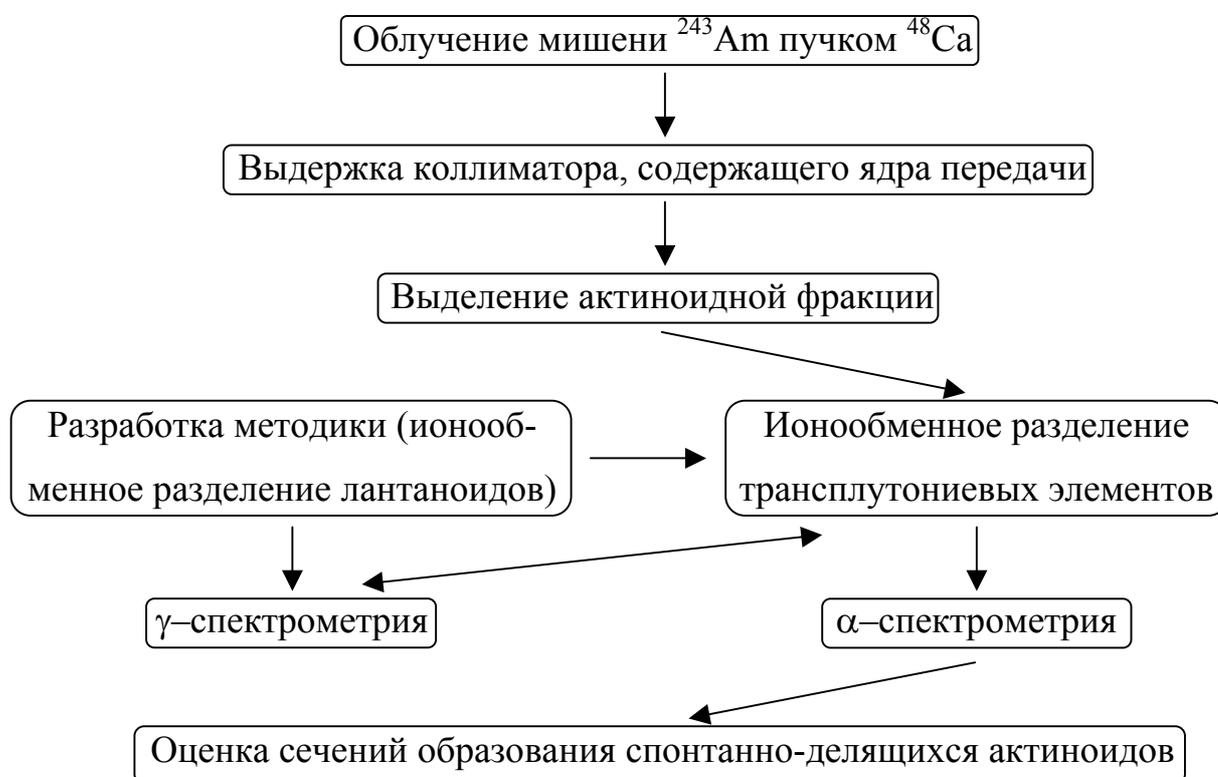
- создание малоотходных и безотходных производств;
- снижение использования токсичного сырья в производстве (по возможности замена его на малотоксичное и нетоксичное);
- использование отходов производства (введение рециклов, создание замкнутых циклов);
- переход на непрерывные схемы производства;
- снижение энергоемкости производства;
- использование новейшего оборудования.

Многочисленные исследования в области охраны окружающей среды показывают, что применение малоотходной и безотходной технологий позволит не только решить экологические проблемы, но и обеспечить высокую экономическую эффективность производства. Однако реализация этих мероприятий рассчитана на длительный период. Поэтому в настоящее время важнейшей проблемой является разработка эффективных очистных установок для улавливания и обезвреживания различных отходов производства.

Экологическая характеристика темы работы

В представленной дипломной работе рассматривается и разрабатывается методика ионообменного разделения трансплутониевых элементов с последующим определением сечений образования спонтанно-делящихся актиноидов. На всех этапах выполнения данной работы предусматривается использование микроколичеств α - и γ -активных изотопов элементов и химических реактивов, обладающих токсическими свойствами, что создает потенциальную опасность для людей, занятых в работе.

Блок-схема эксперимента



Токсикологическая характеристика используемых в работе соединений приведена в приложении 1 (охрана труда).

Вопросы газоочистки

В ходе выполнения данной работы использовались такие газы, как гелий He и азот N₂, необходимые для создания избыточного давления в хроматографической колонке с целью осуществления ионообменного разделения. При комнатной температуре они обладают столь низкой реакционной способностью, что их можно считать инертными. Поскольку все работы проводились в вытяжном шкафу, то выделявшиеся газы удалялись через систему газоочистки и попадали в атмосферу.

Переработка и обезвреживание жидких отходов

Все опыты проводились с использованием микроколонок, поэтому суммарный объем жидких отходов после каждого опыта не превышал 50 мл. В состав отходов входили вода, растворы азотной и α -оксиизомасляной кислот и хлорида аммония. Все отходы, образующиеся на стадиях подготовки (промывки), удалялись через спецканализацию, остальные, поскольку содержали небольшие количества радиоактивных элементов, – в емкости для сбора жидких радиоактивных отходов с последующей утилизацией на Загорском полигоне "Радон". Растворы, содержащие основные количества активности, использовались повторно в последующих опытах (замкнутый цикл) и поэтому отходами не считались.

Переработка и обезвреживание твердых отходов

Образующиеся в ходе проведения эксперимента твердые отходы можно разделить на две группы: горючие и негорючие. К горючим относятся фильтровальная бумага и одноразовые твердые индикаторы, повторное использование которых не представляется возможным. К негорючим – негодная стеклянная химическая посуда. Сбор отходов с возможным содержанием активности осуществлялся в соответствующие емкости для твердых радиоактивных отходов с сортировкой их на горючие и негорючие. Ионообменные смолы после соответствующей подготовки использовались повторно и, следовательно, к твердым отходам не относились.

Оценка относительной агрессивности веществ в воздухе

Для определения показателей относительной агрессивности пользуются формулой:

$$A_i^{\text{возд}} = a_i \cdot \alpha_i \cdot \delta_i \cdot \lambda_i \cdot \beta_i,$$

где a_i – характеризует относительную опасность присутствия примеси в воздухе, вдыхаемом человеком;

α_i – поправка, учитывающая вероятность накопления исходной примеси или вторичных загрязняющих веществ в компонентах окружающей среды и цепях питания, а также поступления примеси в организм человека неингаляционным путем;

δ_i – поправка, характеризующая вредное воздействие примеси на остальных реципиентов (кроме человека);

λ_i – поправка на вероятность вторичного заброса примесей в атмосферу после их оседания на поверхностях (для пылей);

β_i – поправка на вероятность образования из исходных примесей, выброшенных в атмосферу, других (вторичных) загрязняющих веществ, более опасных, чем исходные (для легких углеводородов).

Предельно допустимая концентрация загрязняющих веществ в атмосферном воздухе характеризуется двумя основными показателями:

- 1) среднесуточной предельно допустимой концентрацией примеси ПДК_{cci} [$\text{мг}/\text{м}^3$] (для монооксида углерода $\text{ПДК}_{\text{cc}} = 3 \text{ мг}/\text{м}^3$);
- 2) предельно допустимым значением средней за рабочую смену концентрации примеси в воздухе рабочей зоны $\text{ПДК}_{\text{p.з.i}}$ [$\text{мг}/\text{м}^3$] (для монооксида углерода $\text{ПДК}_{\text{p.з.}} = 20 \text{ мг}/\text{м}^3$).

Показатель a_i задает уровень опасности для человека вещества i -го типа по отношению к уровню опасности оксида углерода:

$$a_i = \sqrt{\frac{60}{\text{ПДК}_{\text{cci}} \cdot \text{ПДК}_{\text{pзи}}}}.$$

Показатели агрессивности и опасности примесей в атмосферном воздухе [66]

Вещество	ПДК _{сст} , мг/м ³	ПДК _{рз} , мг/м ³	ВДК _{ав} , мг/м ³	ВДК _{рз} (ОБУВ), мг/м ³	a _i , усл. т/т	α _i	δ _i	λ _i	β _i	A _i , усл. т/т
HNO ₃	0,15	5	–	–	8,94	1	2	1	1	17,9
α–НІВ	–	–	0,028	2,2	31,15	1	2	1	1	62,3
NH ₃	0,04	20	–	–	8,66	1	1,2	1	1	10,4
NH ₄ Cl	–	10	0,071	–	9,21	1	1	1	1	9,2
Cu	0,002	0,1	–	–	547,72	5	1,2	1	1	3286,3
Lu	–	–	0,040	4	19,34	5	1,2	1	1	116,0
Yb	–	–	0,040	4	19,34	5	1,2	1	1	116,0
Dy	–	5	0,046	–	16,14	5	1,2	1	1	96,8
Gd	–	5	0,046	–	16,14	5	1,2	1	1	96,8
Eu	–	–	0,052	6	13,92	5	1,2	1	1	83,5
Np	–	0,017	0,001	–	1612,17	5	1,2	1	1	9673,0
Am	–	0,014	0,001	–	1886,74	5	1,2	1	1	11320,4
Cm	–	0,012	0,001	–	2137,66	5	1,2	1	1	12826,0
Bk	–	0,010	0,001	–	2477,85	5	1,2	1	1	14867,1
Cf	–	0,011	0,001	–	2293,76	5	1,2	1	1	13762,5

При отсутствии утвержденных значений ПДК_{сст} допускалось использование расчетных значений временно допустимых концентраций ВДК_{ав} для атмосферного воздуха населенных мест.

Для расчета ВДК_{ав}, использовалась формула:

$$\lg(\text{ВДК}_{\text{ав}}) = 0,62 \cdot \lg(\text{ПДК}_{\text{рз}}) - 1,77.$$

При отсутствии утвержденных значений ПДК_{рз} допускалось использование показателя ориентировочного безопасного уровня воздействия в воздухе рабочей зоны ОБУВ_{рз}.

В представленной дипломной работе использовалось органическое соединение (α–оксиизомаляновая кислота), для которого не установлены нормативы предельно допустимых концентраций. Поэтому был произведен расчет временно допустимой концентрации ВДК_{рз} химического вещества в атмосферном воздухе:

$$\text{ВДК}_{\text{рз}} = \frac{M \cdot 1000}{\sum_i J_i},$$

где $\sum_i J_i$ – сумма значений биологической активности химических связей атомов в молекуле нормируемого химического вещества, м³/мкмМ;

M – молекулярная масса химического вещества, кг/кмоль.

$$M[(\text{CH}_3)_2\text{C}(\text{OH})\text{COOH}] = 104 \text{ кг/кмоль.}$$

$$\text{ВДК}_{\text{рз}} = \frac{104 \cdot 1000}{6 \cdot 0,8 + 3 \cdot 51,4 + 1 \cdot (-12517,8) + 2 \cdot 21987,7 + 2 \cdot 8507,9} = 2,1 \text{ [мг/м}^3\text{]}.$$

6 – количество С–Н связей;

2 – количество С–О связей;

3 – количество С–С связей;

2 – количество О–Н связей.

1 – количество С=О связей;

Оценка относительной агрессивности веществ в воде

Каждое из веществ, как и при загрязнении атмосферы, характеризуется своим показателем относительной агрессивности $A_i^{\text{вод}}$, имеющим непосредственную связь с предельно допустимой концентрацией ПДК_{вд} [мг/дм³], i-го вещества в воде водных рыбохозяйственных объектов:

$$A = 1/\text{ПДК}_{\text{ври}}, \text{ усл.т/т.}$$

Таблица 2

Показатели агрессивности примесей в водоемах
рыбохозяйственного значения

Вещество	ПДК _{ври} , мг/дм ³	ВДК _{ви} , мг/дм ³	A _i , усл.т/т
HNO ₃	0,08	–	12,5
α–НІВ	–	0,163	6,1
NH ₃	0,05	–	20,0
NH ₄ Cl	1,20	–	0,8
Cu	0,001	–	1000,0
Lu	–	0,233	4,3
Yb	–	0,233	4,3
Dy	–	0,267	3,7
Gd	–	0,267	3,7
Eu	–	0,298	3,4
Np	–	0,008	120,1
Am	–	0,007	135,2
Cm	–	0,007	148,5
Bk	–	0,006	166,0
Cf	–	0,006	156,6

При отсутствии утвержденных значений ПДК_{вр} использовались расчетные значения временно допустимой концентрации ВДК_в.

Для расчета ВДК_в, использовалась формула:

$$\lg(\text{ВДК}_v) = 0,61 \cdot \lg(\text{ПДК}_{pz}) - 1,0.$$

Оценка экономического ущерба от загрязнения поверхности почвы твёрдыми отходами

Размер ущерба рассчитывают по формуле:

$$Y_{\Pi} = Y_{\Pi} \cdot M,$$

где M – масса твёрдых отходов, т/год;

Y_{Π} – удельный ущерб от поступления в окружающую среду 1 т твёрдых отходов, руб/т.

$$Y_{\Pi} = y_{уд} + y_{Т},$$

где $y_{уд} = Z_{Т} + C_{с} + E_{н} \cdot K_{с}$; $y_{Т} = (Z_{з} + Z_{р}) \cdot S$,

Таблица 3

Расчет $y_{уд}$

$Z_{Т}$, руб/т	$C_{с}$, руб/т	$E_{н}$	$K_{с}$	$y_{уд}$, руб/т
9,38	0,147	0,15	0,5	9,60

$Z_{Т} = 9,38$ (расстояние перевозки 100 км)

$K_{с} = 0,5$ (высота складированных отходов с учётом полного уплотнения за весь период эксплуатации полигона пусть будет 4 м.).

Таблица 4

Расчет $y_{Т}$

$Z_{з}$, руб/га	$Z_{р}$, руб/га	s , га/т	$y_{Т}$, руб/т
32500	2618	0,0002	7,02

$$Y_{\Pi} = 9,60 + 7,02 = 16,62 \text{ руб/т.}$$

Так как при выполнении данной дипломной работы в год может образоваться не более 3-х килограммов твердых отходов, то значение величины ущерба будет близко нулю.

Заключение

Ввиду малого расхода химических веществ и фактически полного возврата продуктов в технологическую схему, что свидетельствует о замкнутости цикла использования химического сырья, загрязнение окружающей среды сведено к минимуму.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ:

1. Akovali Y. A. Nuclear Data Sheets, 1992, 66, 505.
2. Мухин К. Н. Экспериментальная ядерная физика. Том 1. Физика атомного ядра. М.: Атомиздат, 1974. – 584с.
3. Григорьев И. С., Мейлихов Е. З. Физические величины. Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1991. – 1232 с.
4. Petrzhak K. A., Flerov G. N., Physical Review, 1940, 58, 89.
5. Bohr N., Wheeler J. Physical Review, 1939, 56, 426.
6. Sobiczewski A., Gareev F. A., Kalinkin B. N. Physical Letters, 1966, 22, 500.
7. Dmitriev S. N., Oganessian Yu. Ts., Itkis M. G. 2nd International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements, 2003, p. 204.
8. Dmitriev S. N., Oganessian Yu. Ts., Itkis M. G. Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, 2002, vol. 3, № 1, p. 125.
9. Мясоедов Б. Ф., Гусева Л. И., Лебедев И. А. и др. Аналитическая химия трансплутониевых элементов. М.: "Наука", 1972 – 374 с.
10. Scherer U. W., Bröchle W., Brügger M. et al. Z. Phys. A – Atomic Nuclei, 1990, 335, 421 – 430.
11. Loveland W., Gregorich K. E., Patin J. B. et al. Physical Review C, 2002, 66, 044617.
12. Oganessian Yu. Ts., Utyonkov V. K., Lobanov Yu. V. et al. Physical Review C, 2000, 62, 041604(R).
13. Oganessian Yu. Ts., Utyonkov V. K., Lobanov Yu. V. et al. JINR preprint, 2003, E7-2003-178.
14. Брандштеттер И., Ван Тун-сен, Ермаков В. А. и др. Радиохимия, 1963, 5, 715.
15. Белозеров А. В., Борча К., Длоугы З. и др. Сборник аннотаций, ОИЯИ, 1984, Д7-84-736, с. 24.
16. Nagame Y., Asai M., Haba H. et al. Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, 2002, vol. 3, № 1, p. 85.
17. Lazarev Yu. A. Physical Review C, 1996, 54, 620.

18. Ghiorso A., Harvey B. G., Choppin G. R. et al. *Physical Review*, 1955, 98, 1518.
19. Fields P. R., Friedman A. M., Milsted J. et al. *Physical Review*, 1957, 107, 1460.
20. Ghiorso A., Sikkeland T., Larsh A. E. et al. *Physical Review Letters*, 1961, 6, 473.
21. Flerov G. N., Oganessian Yu. Ts., Lobanov Yu. V. et al. JINR preprint, 1964, D-1818.
22. Flerov G. N., Oganessian Yu. Ts., Lobanov Yu. V. et al. JINR preprint, 1970, P7-5164.
23. Ghiorso A., Nitschke J. M., Alonso J. R. et al. *Physical Review Letters*, 1974, 33, 1490-1493.
24. Оганесян Ю. Ц., Демин А. Г., Юссонуа М. и др. Сборник аннотаций, ОИЯИ, 1984, Д7-84-736, с. 57.
25. Оганесян Ю. Ц., Юссонуа М., Демин А. Г. и др. Сборник аннотаций, ОИЯИ, 1984, Д7-84-736, с. 59.
26. Kaufmann R., Wolfgang R. *Physical Review*, 1960, 121, 192.
27. Moody K. J., Lee D., Welch R. B. et al. *Physical Review C*, 1986, 33, 4.
28. Leyba J. D., Henderson R. A., Hall H. L. et al. *Physical Review C*, 1990, 41, 5.
29. Türlер A. 2nd International Conference on the Chemistry and Physics of the Transactinide Elements, 2003, p. 59.
30. Schädel M. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, 2002, vol. 3, №1, p. 113.
31. Türlер A., Düllmann Ch. E., Gäggeler H. W. et al. *European Physical Journal*, 2003, A 17, 505-508.
32. Hoffman D. C., Fowler M. M., Daniels W. R. et al. *Physical Review C*, 1985, 31, 5.
33. Armbruster P., Agarwal Y. K., Brüchle W. et al. *Physical Review Letters*, 1985, 54, 5.
34. Gäggeler H., Brüchle W., Brügger M. et al. *Physical Review C*, 1986, 33, 6.

35. Türler A., von Gunten H. R., Leyba J. D. et al. *Physical Review C*, 1992, 46, 4.
36. Oganessian Yu. Ts., Yeremin A. V., Popeko A. G. et al. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, 2002, vol. 3, № 1, p. 217.
37. Oganessian Yu. Ts., Yeremin A. V., Gulbekian G. G. et al. *European Physical Journal*, 1999, A 5, 63 – 68.
38. Oganessian Yu. Ts., Utyonkov V. K., Lobanov Yu. V. et al. *Physical Review C*, 2000, 63, 011301(R).
39. Oganessian Yu. Ts., Utyonkov V. K., Lobanov Yu. V. et al. *JINR preprint*, 2002, D7-2002-287.
40. Звара И. И. *Российский химический журнал*, 1996, 6, 40.
41. Гангрский Ю. П., Марков Б. Н., Перелыгин В. П. *Регистрация и спектрометрия осколков деления*. М.: Энергоиздат, 1981. – 224 с.
42. Dmitriev S. N., Oganessian Yu. Ts., Utyonkov V. K. et al. *Mendeleev Communications*, 2005, vol. 1, p. 1.
43. Мец Ч., Уотерби Г. *Аналитическая химия трансурановых элементов /Перевод с английского: к.х.н. Михайлова В. А., к.х.н. Симакина Г. А. и Ефимова А. Ф./*. М.: Атомиздат, 1967. – 240 с.
44. Брандштеттер И., Зварова Т. С., Крживанек М. и др. *Радиохимия*, 1963, 5, 694.
45. Брандштеттер И., Волков В. В., Ермаков В. А. и др. *Радиохимия*, 1963, 5, 706.
46. Хайд И. К., Сиборг Г. Т. *Трансурановые элементы*. Перевод с английского Корнаухова В. А. М.: Издательство иностранной литературы, 1959. – 206 с.
47. Сиборг Г. Т. *Актиниды*. М.: Издательство иностранной литературы, 1955. – 197 с.
48. Брандштеттер И., Крживанек М., Малы Я. и др. *Радиохимия*, 1963, 5, 699.
49. Эстевес Х., Брухертзайфер Х., Айхлер Б. и др. *Сборник аннотаций*, ОИЯИ, 1984, Д7-84-736, с. 98.

50. Лебедев Н. А. Получение радиоактивных препаратов редкоземельных элементов и источников излучения для ядерно-спектроскопических исследований. Диссертация на соискание ученой степени кандидат химических наук. ОИЯИ, 1973.
51. Риман В., Уолтон Г. Ионообменная хроматография в аналитической химии. /Перевод с английского: к.х.н. Галкиной Н. К., к.х.н. Колосовой Г. М. и Матвеевой И. В. Под редакцией чл.-корр. АН СССР Чмутова К. В./ М.: Мир, 1973. – 375 с.
52. Мурин А. Н., Нефедов В. Д., Шведов В. П. Радиохимия и химия ядерных процессов. Л.: Государственное научно-техническое издательство химической литературы, 1960. – 784 с.
53. Москвин А. И. Координационная химия актиноидов. М.: Атомиздат, 1975. – 288 с.
54. Foti S. C., Wish L. Journal of Chromatography, 1967, 29, 203.
55. Wish L., Foti S. C. Journal of Chromatography, 1965, 20, 585.
56. Золотов Ю. А. Экстракция внутрикомплексных соединений. М.: "Наука", 1968. – 313 с.
57. Землянухин В. И. Радиохимия, 1963, 5, 674.
58. Браун Т. Экстракционная хроматография. М.: "Наука", 1978. – 342 с.
59. Лазарев Н. В. Вредные вещества в промышленности, том I–II. Л.: Химия, 1977.
60. Беспямятнов Г. П., Кротов Ю. А. Предельно допустимые концентрации химических веществ в окружающей среде. Л.: Химия, 1985. – 528 с.
61. СН 245-71. Санитарные нормы проектирования промышленных предприятий. М.: Стройиздат, 1972.
62. Нормы радиационной безопасности. Минздрав России, 1999. – 115 с.
63. СНиП 23-05-95. Строительные нормы и правила. Нормы проектирования. Естественное и искусственное освещение. М.: Стройиздат, 1995.
64. НПБ 1-05-95. Определение категорий помещений по взрывопожароопасности. Москва, ГУЦ ЦПП, 1997.

65. Макаров Г. В. Охрана труда в химической промышленности. М.: Химия, 1989. – 496 с.
66. Филов В. А. Вредные химические вещества. Радиоактивные вещества. Л.: Химия, 1990. – 463 с.