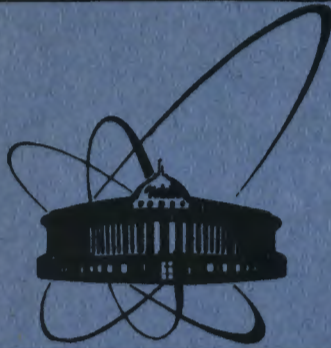


9/10-84



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

1769/84

15-83-888

С.П.Третьякова; Л.В.Джолос, В.А.Пономаренко

РЕГИСТРАЦИЯ
СПОНТАННО ДЕЛЯЩЕГОСЯ НУКЛИДА
В МЕТЕОРИТЕ АЛЛЕНДЕ

Направлено в журнал "Метеоритика"

1983

ВВЕДЕНИЕ

К настоящему времени выполнено большое количество теоретических и экспериментальных работ по поиску в природных образцах сверхтяжелых элементов с $z = 110-126$ ^{/1-10/}. Наиболее обнадеживающие результаты по этой проблеме были получены в работах Флерова и др.^{/5/} и Звары и др.^{/6/}. Основным методом поиска служила регистрация спонтанного деления в предположении, что делится если не сам долгоживущий нуклид, то его продукты распада.

В первой работе акты спонтанного деления в углистых хондритах Ефремовка, Саратов, Алленде регистрировались по мгновенным нейтронам деления^{/10/}. В результате в 10,5 кг вещества метеорита Алленде с эффективностью регистрации в 30% было зарегистрировано 8 событий за 45 сут наблюдения. Содержание урана /единственный спонтанно-делящийся элемент в природе/ в метеорите Алленде составляет $1-3 \cdot 10^{-8}$ г/г^{/5/}. Это означает, что скорость счета событий на порядок меньше фона, причем необходимо отметить, что среднее число мгновенных нейтронов деления зарегистрированных событий находится в интервале $4 \div 10$, а для урана эта величина равна 2.

Полученные данные позволили предположительно оценить концентрацию искомого нуклида. Она находится на уровне $3 \cdot 10^{-15} - 3 \cdot 10^{-14}$ г/г в предположении, что период полураспада равен 10^9 лет, что соответствует $6 \cdot 10^9 - 6 \cdot 10^{10}$ атомов в 1 кг вещества^{/3/}.

Эти результаты были подтверждены экспериментом по химическому выделению наблюдаемого нуклида из метеорита Алленде^{/6/}, где спонтанное деление регистрировалось пропорциональными счетчиками с эффективностью регистрации $60 \pm 10\%$. В предположении, что сверхтяжелый элемент должен обладать значительной летучестью в элементарном состоянии, метеоритное вещество нагревали в токе водорода и кислорода до 1000°C , собирали и затем изучали активность продуктов возгонки. Она составила 0,02 распада/сут в расчете на 1 кг метеоритного вещества.

Более поздние работы^{/8,9/} по изучению спонтанно-делящейся активности в сульфидной фракции после химического разделения метеоритного вещества Алленде не дали положительного результата. Для регистрации спонтанного деления использовали низкофонный диэлектрический детектор слюды, на который наносилась сульфидная фракция. Мгновенные нейтроны деления регистрировались с эффективностью 80% полупроводниковым детектором в совпадении с осколком деления при эффективности 60%. В результате экспозиции наблюдалось 22 события за год, зарегистрированные полупроводни-

ковым детектором площадью 10 см^2 , и ни одного события - за время ~ 7 мес, если площадь детектора уменьшалась до 3 см^2 . В результате просмотра всех образцов слюды найден только один трек осколка, который был отнесен к спонтанному делению урана в слюде. Ненаблюдение эффекта в слюде дало основание авторам предполагать, что все события, полученные на электронной аппаратуре, вызваны ее неисправностью.

Авторы дали верхнюю границу содержания сверхтяжелого элемента в Алленде на уровне меньше $2 \cdot 10^{-15} \text{ г/г}$. Однако метод разделения, очень толстые слои /до $6,5 \text{ г/см}^2$ / препарата с учетом того, что толщина эффективно работающего слоя не превосходит $2,4 \text{ мг/см}^2$, могли дать сильно заниженные результаты.

Продолжение изучения свойств нуклида, выделенного из 8 кг метеорита Алленде по методу ^{8/}, при дальнейшей сублимации снова подтвердили результаты ^{5,8/} и показали, что найденная активность не может принадлежать элементам Pu, Cm, Cf.

В настоящей работе преследовалась цель зарегистрировать активность нового излучателя в исходном материале метеорита Алленде с помощью низкофоновых диэлектрических детекторов по трекам осколков спонтанного деления нуклида.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Использовался метод регистрации редких событий спонтанного деления по наблюдению совпадения двух треков, противоположно направленных осколков деления в двухслойном поликарбонатном диэлектрическом детекторе, между которыми помещалось метеоритное вещество в виде тонкого слоя.

Один из детекторов имел толщину 12 мкм - значительно меньше среднего пробега осколка деления. Выявление в нем трека проводилось методом искрового пробоя ^{11-13/} после соответствующего травления в щелочи, которое необходимо для создания вдоль траектории осколка сквозного канала.

Второй, коррелированный первому, трек осколка должен был находиться в "толстом" ^{1/185 мкм/} детекторе в местах, соответствующих пробую при совмещении двух детекторов. Такой метод позволяет полностью избавиться от фона, обусловленного механическими повреждениями или несовершенством качества пленки, и просматривать под микроскопом меньшую площадь.

ЭФФЕКТИВНОСТЬ РЕГИСТРАЦИИ ИСКРОВОГО МЕТОДА

Эффективность регистрации треков искровым пробоем зависит от толщины детектора и слоя метеоритного вещества.

Детектор по отношению к электрическому пробую имеет свой собственный фон, вызванный дефектами пленки. Испытания, прове-

денные с поликарбонатными пленками типа КС/ФРГ/ разной толщины от $3,5$ до 12 мкм , показали, что только пленка толщиной 8 мкм выдерживает обычно используемое пробивное напряжение в $800-1000 \text{ В}$.

В качестве тонкого детектора использовалась пленка толщиной 12 мкм , которая травилась до остаточного слоя в 8 мкм ^{13/}. Эффективность образования сквозных каналов треков осколков деления зависит от угла входа осколка в детектор θ : $\sin \theta = \delta/R$, где δ - рабочая толщина детектора и в данном случае она равна 10 мкм ; R - средний пробег осколка деления ядра в поликарбонате для 114 элемента, в предположении, что средняя кинетическая энергия осколка $\sim 110 \text{ МэВ}$, $R = 24 \text{ мкм}$ /для ядер урана - 18 мкм/ .

Минимальный угол регистрации осколков деления 114 элемента составляет 25° , а для урана - 34° . Отсюда эффективность регистрации $\epsilon = (1 - \sin \theta)$ составит для 114 элемента - 58% , для урана - 43% .

При толщине слоя в 1 мг/см^2 треки осколков деления урана, как было показано в ^{18/}, регистрируются с эффективностью 90% . С учетом того, что только 90% треков пробивается при искровом методе, ожидаемая суммарная регистрация должна составлять $\sim 47\%$.

Экспериментальная проверка проводилась на 6 образцах детекторов 12 мкм площадью 650 см^2 , облученных осколками деления ядер ²⁴⁴Cm /толщина слоя 1 мг/см^2 /. После травления пленки до 8 мкм число треков определялось при просмотре под микроскопом. Затем, при постепенном повышении пробойного напряжения от 400 до 1000 В с шагом 100 В , для каждого значения напряжения подсчитывалось количество пробоев. Оказалось, что с увеличением напряжения до 800 В оно растет, затем наступает насыщение. Эффективность регистрации треков осколков деления составила 40% от общего количества в геометрии 2π .

Необходимо отметить, что после травления пленка остаточной толщины в 8 мкм имела фон от пробоя $5-10 \text{ шт/650 см}^2$.

ПРИГОТОВЛЕНИЕ РАБОЧЕГО СЛОЯ

Для размельчения метеорита использовались два устройства: для грубого и мелкого помола. В первом случае применялся дробильный аппарат, во втором - "шаровая" мельница. Конечный препарат имел размеры зерен $\sim 1-3 \text{ мкм}$, однако встречались кристаллы оливина размерами до $10-20 \text{ мкм}$. Перед использованием оба аппарата тщательно очищались трехкратным помолом природных кристаллов кварца, в котором содержится не более 10^{-14} г/г урана.

Концентрация урана в последних образцах помола кварца и метеорита определялась активационным методом с помощью тепловых нейтронов. Таким же образом проверялась чистота всех используемых в эксперименте материалов.

Для приготовления равномерно распределенного и прочно держащегося на детекторе рабочего слоя в порошок вещества добавлялся специально приготовленный 0,5%-раствор нитрата целлюлозы в ацетоне.

Суспензия наносилась с помощью распылителя СО-71А, к которому пылесосом подавался очищенный ядерным фильтром /диаметром пор 0,5 мкм/ воздух. Толщина слоя определялась весовым методом и составляла в основном 1 мг/см², не превышая в отдельных случаях 2 мг/см².

СБОРКА СТОПКИ

Общая схема сборки стопки показана на рис.1. Стопка состояла из 433 слоев поликарбонатных детекторов толщиной 185 мкм площадью по 2000 см², на которые были нанесены слои исследуемого вещества метеорита.

Два детектора со слоем вещества складывались обратной стороной друг к другу /1/. Между ними прокладывался тонкий /12 мкм/ детектор /3/ в виде длинной непрерывной ленты. Вся сборка зажималась двумя плексигласовыми пластинами /4/. Сквозь стопку пропускали 4 штифта /5/, которые служили держателями и отметчиками для совмещения слоев при поиске двух коррелированных осколков деления ядер.

Собранная стопка находилась в подвальном, специально подготовленном помещении, где уровень космического фона был ничтожным. Время экспозиции составляло 10 мес.

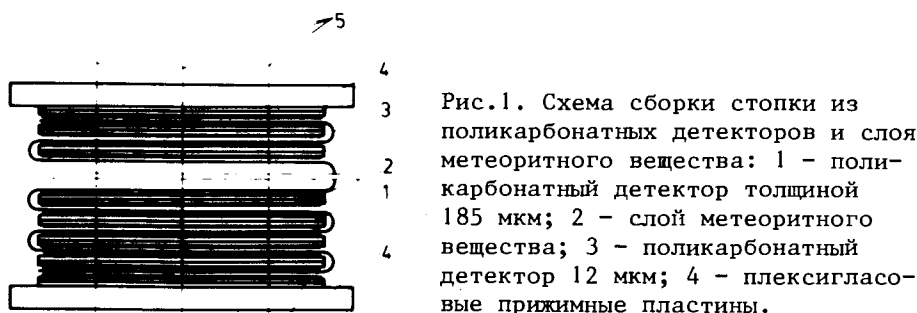


Рис.1. Схема сборки стопки из поликарбонатных детекторов и слоя метеоритного вещества: 1 - поликарбонатный детектор толщиной 185 мкм; 2 - слой метеоритного вещества; 3 - поликарбонатный детектор 12 мкм; 4 - плексигласовые прижимные пластины.

ХИМИЧЕСКАЯ ОБРАБОТКА ДЕТЕКТОРОВ

После экспозиции в первую очередь травился тонкий детектор. Схема травильной установки показана на рис.2.

Образец пленки /- 7 пог.м/ помещался в держатель /1/, травление проходило в термостатируемом 30%-растворе КОН при температуре 60±0,5 °С. Затем детектор тщательно промывался в очищенной

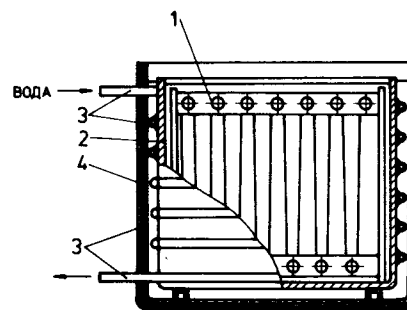


Рис.2. Схема установки для травления детектора 12 мкм: 1 - держатель из нержавеющей стали, 2 - бак для травления /нержавеющая сталь/, 3 - медная трубка для подачи термостатирующей воды, 4 - бак для создания "водяной рубашки".

холодной /8-10 °С / воде и сушился в потоке теплого воздуха. Перед искровым пробоем слои очищались спиртом.

ИСКРОВОЙ ПРОБОЙ ДЕТЕКТОРА

Схема установки в общем виде представлена на рис.3. Она подобна тем, что используются обычно для определения плотности треков /13/.

Процесс регистрации состоит в следующем:

На хорошо отполированную латунную плиту /1/ площадью $S = 650 \text{ см}^2$ накладывают протравленный тонкий детектор /2/, который покрывают алюминизированной лавсановой пленкой /толщина лавсана 10 мкм, слой Al < 1 мкм/. Эта фольга и латунная плита служили электродами. На них от высоковольтного генератора подавалось напряжение для осуществления пробы вдоль сквозных каналов в тонком детекторе. Сверху, для хорошего контакта пленки с электродами, накладывалась прижимная плита с грузом, создавая давление в 8,5 кПа.

При регистрации редких событий важным является выбор режима пробоя, чтобы, при достаточно низком фоне от пробоя дефектов, получить высокую эффективность регистрации, а Al - слой испарить так, чтобы пятна на алюминизированной фольге и поликарбонате были хорошо различимы невооруженным глазом.

Как известно, площадь пробойного пятна приблизительно пропорциональна заряду $\theta = cv$, где c - суммарная емкость детектора и пробивного конденсатора, а v - напряжение пробоя.

Для выбора оптимальных условий пробоя детекторов была проделана серия опытов, в которой определялось отношение "сигнал" / $N_{\text{Тр}}$ число пробитых треков/ к "фону" / $N_{\text{Ф}}$ - число фоновых событий/ $K_C = N_{\text{Тр}}/N_{\text{Ф}}$.

С этой целью 6 образцов пленки облучались осколками деления ²⁴⁴См в 12 точках общей плотностью ~ 1 осколок на 10 см². Меняя время травления, величину рабочего напряжения, емкость пробойного конденсатора и величину прижимного давления на детектор

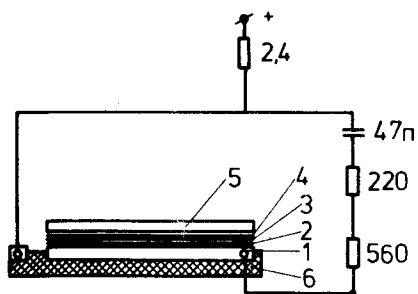


Рис.3. Схема устройства для истробного пробоя: 1 - латунная плита; 2 - поликарбонатный детектор; 3 - алюминизированный лавсан; 4 - фильтровальная бумага; 5 - прижимная плита; 6 - изолятор-текстолит.

при пробое, мы определили, что при $c=47$ пФ, $p=8,5$ кПа, K_c изменяется от 1,1 до 1,4 при увеличении напряжения от 500 до 800 В. Рабочим выбрано напряжение в 800 В.

После пробоя тонкий детектор совмещался с толстым. Под пробойными пятнами вырезались образцы площадью $0,8$ см².

Слой метеоритного вещества удалялся путем предварительного травления в течение суток в 10% растворе NaOH при $t \sim 20^\circ\text{C}$ и последующего промывания в магнитной мешалке в течение 3-4 ч. Осадок вещества собирался для повторного использования. Образцы детектора подвергались дополнительному травлению до диаметра трека 10 мкм при 70°C в 20% растворе NaOH.

Процесс травления обоих детекторов контролировался по образцам поликарбонатной пленки, облученной ионами ксенона с энергией ~ 1 МэВ/нуклон.

Поиск треков осколков в детекторе 185 мкм проводился под микроскопом при увеличении 100х.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

При использовании описанного метода регистрации спонтанного деления нуклида из 850 г метеоритного вещества по совпадающим трекам осколков деления было найдено 6 событий, что составляет за время экспозиции 10 мес. - $0,02$ расп/сутки·кг.

Проверка содержания урана в приготовленной стопке показала, что его количество составляет $1,2 \cdot 10^{-8}$ $\pm 10\%$. Это означает, что фон, обусловленный спонтанным делением урана за 10 мес экспозиции, равен ~ 1 распаду.

Фон от смеси техногенных трансурановых изотопов на поверхности метеорита, как показано в ⁵, не может превысить 1 деления в год.

Таким образом, результаты данной работы подтверждают ранее сделанное заключение о том, что в образцах метеорита Алленде присутствует долгоживущий спонтанно делящийся нуклид, принадлежащий к области сверхтяжелых элементов.

В заключение авторы выражают глубокую признательность за предложенную тему исследования и за постоянное внимание к работе академику Г.Н.Флерову и благодарность доктору Р.Брандту /ФРГ/ за предоставленные образцы метеорита Алленде, Г.М.Тер-Акопяну и В.П.Перелыгину - за полезные обсуждения и советы, Г.И.Ковалю - за помощь в создании аппаратуры, Л.И.Черниковой - за помощь при обработке детекторов, сотрудникам Лаборатории - за помощь при просмотре детекторов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Stoughton R.W. et al. Nature Phys. Science, 1973, 246, p.26.
2. Флеров Г.Н. и др. ЯФ, 1974, 20, с. 472.
3. Flerov G.N. Proc. Intern.Conf. on Reactions between Complex Nuclei, v. 2, Nashville, USA, 1974, p. 459.
4. Herrmann G., Inorganic Chemistry, 8, ser. 2, Radiochemistry, London, ed. A.G.Maddock, 1974, p. 221.
5. Флеров Г.Н. и др. ЯФ, 1977, 26, с. 449.
6. Звара И. и др. ЯФ, 1977, 26, с. 455.
7. Brandt R. In Proc. of Int.Sump. on Superheavy Elements, Lubbock, 1978.
8. Lund T. et al. Inorg. Nucl.Chem.Lett., 1979, 15, p. 413-416; Nucl.Instr. and Meth., 1979, 159, p. 75.
9. Zhuckov B.L., Zvara I. Radiochem.Radioanal.Letters. 1980, 44/1/ 47-60.
10. Флеров Г.Н. и др. ЯФ, 1974, 20, с. 472.
11. Lark N.L. Nucl.Instr.Meth., 1968, 67, p. 137.
12. Tommasino L., Gross W.G. Health Phys., 1968, 15, p. 196.
13. Varnagy M. et al. Nucl.Instr.Meth., 1947, 141, p. 489.
14. Whetherill G.W. Trans.Amer.Geophys.Union, 1973, 54, p. 345.
15. Отгонсурэн О., Перелыгин В.П., Стеценко С.Г. ОИЯИ, Р7-9551, Дубна, 1976.
16. Абдуллаев Х. и др. ПТЭ, №2, 1972, с. 78.
17. Clarke R.S. et al. Smithsonian contributions to the Earth Sciences, 1970, 5, с. 53.
18. Morrison G.H. et al. Radiochem. Radioanal. Letters 11(3-4), 1972, p. 251-268.

Рукопись поступила в издательский отдел
23 декабря 1983 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

	Труды VI Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1978 /2 тома/	7 р. 40 к.
	Труды VII Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц, Дубна, 1980 /2 тома/	8 р. 00 к.
D11-80-13	Труды рабочего совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике, Дубна, 1979	3 р. 50 к.
D4-80-271	Труды Международной конференции по проблемам нескольких тел в ядерной физике. Дубна, 1979.	3 р. 00 к.
D4-80-385	Труды Международной школы по структуре ядра. Алушта, 1980.	5 р. 00 к.
D2-81-543	Труды VI Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1981	2 р. 50 к.
D10,11-81-622	Труды Международного совещания по проблемам математического моделирования в ядерно-физических исследованиях. Дубна, 1980	2 р. 50 к.
D1,2-81-728	Труды VI Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1981.	3 р. 60 к.
D17-81-758	Труды II Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1981.	5 р. 40 к.
D1,2-82-27	Труды Международного симпозиума по поляризационным явлениям в физике высоких энергий. Дубна, 1981.	3 р. 20 к.
P18-82-117	Труды IV совещания по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. Дубна, 1981.	3 р. 80 к.
D2-82-568	Труды совещания по исследованиям в области релятивистской ядерной физики. Дубна, 1982.	1 р. 75 к.
D9-82-664	Труды совещания по коллективным методам ускорения. Дубна, 1982.	3 р. 30 к.
D3,4-82-704	Труды IV Международной школы по нейтронной физике. Дубна, 1982.	5 р. 00 к.
D2,4-83-179	Труды XV Международной школы молодых ученых по физике высоких энергий. Дубна, 1982.	4 р. 80 к.
	Труды УШ Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Протвино, 1982 /2 тома/	11 р. 40 к.
D11-83-511	Труды совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1982.	2 р. 50 к.
D7-83-644	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Алушта, 1983.	6 р. 55 к.
D2,13-83-689	Труды рабочего совещания по проблемам излучения и детектирования гравитационных волн. Дубна, 1983.	2 р. 00 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу:
101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79
Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

Третьякова С.П., Джолос Л.В., Пономаренко В.А. 15-83-888
Регистрация спонтанно делящегося нуклида в метеорите Алленде.

С помощью поликарбонатных пленочных детекторов изучалась спонтанно-делящаяся активность метеорита Алленде. Использовался низкофоновый метод совпадения следов осколков деления искомого нуклида в двух слоях пластика. На один из них, толщиной 185 мкм, наносился слой $\sim 1 \text{ мг/см}^2$ метеоритного вещества. Другой детектор имел толщину 12 мкм. Оба детектора после 10-месячной экспозиции /в специально защищенном от космических лучей помещении/ травились в щелочном растворе для усиления следов осколков деления. Наблюдение следов в тонком детекторе велось методом искрового пробоя, а в толстом - с помощью микроскопа на участках, прилегающих к месту пробоя. В 850 г вещества метеорита Алленде было зарегистрировано 6 событий, что близко к результатам, полученным ранее в Лаборатории ядерных реакций в работах Г.Н.Флерова.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1983

Tretyakova S.P., Dzholos L.V., Ponomarenko V.A. 15-83-888
Registration of Spontaneously Fissioning Nuclide In Allende Meteorite

The spontaneously fissioning activity of the Allende meteorite was studied using polycarbonate film detectors and the low-background technique of detecting coincidences of fission fragment tracks due to the nuclide sought for in to layers of plastic. Of meteorite matter ($\sim 1 \text{ mg/cm}^2$) was deposited onto one of the plastic layers, 185 μm thick. The other detector was 12 μm thick. After a 10 month exposure (in cosmic-ray shielded room) both detectors were etched in an alkaline solution to enlarge the fission fragment tracks. The observation of tracks in the thin detector was carried out using the spark discharge method whereas in the thick one the track parts adjacent to the discharge were viewed with a microscope. In 850 g of Allende meteorite matter 6 events have been detected in close agreement with the results obtained in the earlier studied led by G.N.Flerov at the Laboratory of Nuclear Reactions.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1983

Перевод О.С.Виноградовой