

Ф-716

2012 / 2-77

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



301 r-77

P6 - 10581

Г.Н.Флеров, Г.М.Тер-Акопьян, А.Г.Попеко,
Б.В.Фефилов, В.Г.Субботин

ОБНАРУЖЕНИЕ НОВОГО
СПОНТАННО ДЕЛЯЩЕГОСЯ НУКЛИДА
В НЕКОТОРЫХ МЕТЕОРИТАХ

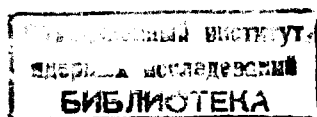
1977

Р6 - 10581

Г.Н.Флеров, Г.М.Тер-Акопьян, А.Г.Попеко,
Б.В.Фефилов, В.Г.Субботин

ОБНАРУЖЕНИЕ НОВОГО
СПОНТАННО ДЕЛЯЩЕГОСЯ НУКЛИДА
В НЕКОТОРЫХ МЕТЕОРИТАХ

Направлено в ЯФ



Флеров Г.Н. и др.

P6 - 10581

Обнаружение нового спонтанно делящегося нуклида
в некоторых метеоритах

С помощью нейтронных детекторов, расположенных в соляной шахте на глубине 1100 м водного эквивалента, исследовалась множественная эмиссия нейтронов из образцов метеоритов Ефремовка, Алленде и Саратов. Обнаруженный эффект множественной эмиссии нейтронов существенно превышает уровень фона от спонтанного деления урана и от ядерных взаимодействий космических мюонов. Для его объяснения необходимо предположить присутствие в метеоритах нового долгоживущего спонтанно делящегося нуклида, концентрация которого составляет $3 \cdot 10^{-15} - 3 \cdot 10^{-14}$ г/г. Среднее число мгновенных нейтронов деления этого нуклида - $4 < \bar{\nu} < 10$.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1977

Flerov G.N. et al.

P6 - 10581

Detection of a New Spontaneously Fissioning
Nuclide in Some Meteorites

Multiple neutron emission in Efremovka, Allende and Saratov meteorites has been measured using neutron detectors installed 1100 m.w.e. underground in a salt mine. The observed effect of neutron multiple emission exceeds considerably the background due to spontaneous fission of uranium and nuclear interactions of cosmic muons. The effect can be explained only by assuming the presence in the meteorites of a new long-lived spontaneously fissioning nuclide with a concentration of $3 \times 10^{-15} - 3 \times 10^{-14}$ g/g. The average number of prompt neutrons due to fission of this nuclide lies between 4 and 10.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research, Dubna 1977

1. ВВЕДЕНИЕ

Поиски в природе сверхтяжелых элементов с $Z = 110-126$ привлекли усилия многих исследовательских групп. Для обнаружения таких элементов были разработаны и применялись различные методы, обеспечивающие высокую чувствительность. Однако в большинстве случаев не было получено положительных указаний о существовании этих элементов. Обзоры выполненных экспериментов содержатся в работах ^{1,2/}, опубликованных нами ранее; пожалуй, наиболее полная библиография по ним приведена в обзоре Херрманна ^{3/}.

В целом результаты проведенных исследований показывают, что дальнейший прогресс в проблеме поиска сверхтяжелых ядер в природе требует применения методов, рассчитанных на обнаружение новых элементов в различных образцах при исключительно низкой концентрации - не выше $10^{-13} - 10^{-14}$ г/г.

Следует отметить, что время от времени некоторыми авторами сообщались данные, как будто бы указывающие на обнаружение сверхтяжелых элементов в природе. Однако более тщательная проверка условий опытов не подтверждала этих результатов. Так, например, в появившейся в 1976 году статье Джентри и др. ^{4/}, сообщалось о наблюдении индуцированного рентгеновского излучения элементов с $Z = 114, 124$ и 126 в ядрах гигантских гало из мадагаскарских слюд. К удивлению, концентрация этих элементов в монацитах, составлявших основу ядер таких гало, по данным авторов ^{4/}, превышала 10^{-5} г/г. Вместе с тем, уже в

1976 году ряд тщательнейших контрольных экспериментов, проведенных специалистами из разных лабораторий, убедительно показал, что сообщение об обнаружении сверхтяжелых элементов в мадагаскарских слюдах было ошибочным.

В Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ поиски сверхтяжелых элементов проводятся, начиная с 1968 года. С этой целью применяются чувствительные методы регистрации активности спонтанного деления в природных образцах^{/1/}. Эти методы развивались в Дубне в течение более чем двадцати лет и применялись в работах по синтезу и изучению свойств трансураниевых элементов с $Z = 102-107$. С помощью специально разработанных установок были изучены сотни разнообразных образцов. В некоторых случаях наблюдалась активность спонтанного деления, превышающая фон от спонтанного деления урана, содержавшегося в образцах. К таким объектам, представляющим интерес для дальнейшего исследования, относятся свинцово-цинковые руды^{/5/}, железо-марганцевые конкреции^{/6/}, геотермальные воды^{/7/}.

В последние годы нами уделялось основное внимание поискам сверхтяжелых элементов в метеоритах типа углистых и неравновесных хондритов. По существующим представлениям^{/8,9/}, метеориты этих типов относятся к наименее дифференцированным образованиям Солнечной системы и они не обеднены тяжелыми летучими металлами /Hg, Tl, Pb, Bi/, гомологами которых предположительно являются ожидаемые сверхтяжелые элементы^{/10/}.

Предположения о возможном существовании в этих метеоритах сверхтяжелых элементов, распавшихся на ранних этапах эволюции Солнечной системы или сохранившихся до наших дней, высказывались и ранее. Так, Андерсом и Хейманом^{/11/} и Даковским^{/12,13/} была выдвинута гипотеза о связи избытка тяжелых изотопов ксенона в этих метеоритах со спонтанным делением сверхтяжелых ядер. Однако ряд аргументов^{/14/}, вполне резонных с нашей точки зрения, свидетельствует о том, что происхождение избытка тяжелых изотопов ксенона в углистых

и неравновесных хондритах может быть обусловлено другими причинами. Несмотря на это, Льюис и др.^{/15/} и Андерс и др.^{/16/} предпринимали попытки обнаружения сверхтяжелых элементов в углистых хондритах, используя методы концентрирования минеральных фракций с повышенным содержанием ксенона-136. Нам представляется, что этот подход не может дать прямых и однозначных данных о существовании или отсутствии сверхтяжелых элементов.

В 1973 году о поисках спонтанно делящихся сверхтяжелых ядер в метеорите Алленде сообщали Стоутон и др.^{/17/}. Полученные результаты позволили указать лишь предел концентрации сверхтяжелого элемента 10^{-13} в предположении, что его период полураспада относительно спонтанного деления равен 10^9 лет*.

С целью поисков спонтанно делящихся сверхтяжелых элементов в углистых и неравновесных хондритах нами^{/2,18-20/} в 1972-74 гг. были проведены измерения множественной эмиссии нейтронов в образцах метеоритов Саратов, Алленде и Ефремовка. Применявшаяся аппаратура превосходила в сто раз по чувствительности установку, использовавшуюся в работе Стоутона и др.^{/17/}. Обнаруженная нами множественная эмиссия нейтронов по числу событий значительно превышала уровень фона, обусловленного спонтанным делением примеси урана. Несмотря на то, что аппаратура была расположена в соляной шахте на глубине 1100 м водного эквивалента, тщательно учитывался фон множественной эмиссии нейтронов, вызванной ядерными взаимодействиями космических мюонов с веществом метеоритов. Было показано, что этот фон был также пренебрежимо мал по сравнению с наблюдаемым эффектом.

Однако, принимая во внимание, что заключение о наличии нетривиального эффекта множественной эмиссии нейтронов из метеоритов имеет принципиальное значение и, естественно, является весьма ответственным,

* При поиске сверхтяжелых элементов по их активности спонтанного деления для исследуемого образца измеряется величина T/C , где T - период спонтанного деления элемента, C - его концентрация в образце в весовых долях.

мы сочли необходимым проведение дополнительных экспериментов. Целью этих экспериментов было определение концентрации примеси урана в представительных пробах метеорита, проведение прямых измерений фона, обусловленного космическим излучением и, наконец, проведение повторного измерения эффекта множественной эмиссии нейтронов из метеорита на установке с улучшенными параметрами. Результаты этих экспериментов, проведенных в 1975-76 гг., приводятся в настоящей работе.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Характеристики детекторов, применявшихся для регистрации событий множественной эмиссии нейтронов, были подробно описаны ранее^{1/}, поэтому мы лишь кратко коснемся этих вопросов. Вокруг чувствительного объема емкостью 10-20 л располагался замедлитель /парафин или оргстекло/, в котором находились пропорциональные счетчики с ³He, обладающие высокой эффективностью регистрации тепловых нейтронов. Нейтроны, испущенные из чувствительного объема, содержащего исследуемый образец, имели среднее время жизни от момента испускания до захвата ядрами ³He или вылета из системы $\tau \approx 70$ мкс. Поэтому в качестве признака спонтанного деления принимались такие события, в которых за интервал времени $3\tau \approx 200$ мкс регистрировались, по меньшей мере, два нейтрона. Электронная схема детектора фиксировала эти события как двукратные, трехкратные и т.д.

В настоящей работе применялся детектор нейтронов с параметрами, улучшенными по сравнению с теми установками, которые использовались ранее^{18,19/}. Было выбрано более оптимальное расположение счетчиков, число которых увеличено до 38. Чувствительный объем равнялся 22 л. В результате эффективность регистрации нейтронов (ϵ) в центральной части образца составила 36% /вместо прежних 19%/ , а в среднем для чувствительного объема она возросла с 12 до 30%.

Измерения проводились в соляной шахте на глубине 1100 м водного эквивалента. Для подавления фона от взаимодействия космических мюонов с образцом, составлявшего на указанной глубине одно двукратное событие за 5 суток с образцом свинца весом 100 кг, применялась защита из счетчиков Гейгера, что снизило фон примерно в 100 раз.

В качестве объекта для измерений в данной работе были взяты образцы метеорита Алленде общим весом 10,5 кг.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

1. Результаты измерений и данные контрольных экспериментов приведены в *таблице*. В колонках этой таблицы со второй по четвертую указаны названия образцов, их вес, средняя эффективность регистрации одиночных нейтронов ($\bar{\epsilon}$), продолжительность измерений.

Таблица

№№ пп	Наименование образца	Вес (кг)	$\bar{\epsilon}$ (%)	Продол- жительность измере- ния (сутки)	Число собы- тий с крат- ностью		
					n=2	n=3	n=4
1.	Саратов	5,2	22	94	4	1	0
2.	Алленде	3,9	22	40	3	0	0
3.	Алленде	22,5	12	55	10	1	0
4.	Ефремовка	11,7	12	106	14	1	0
5.	Свинец	100	22	15	0	0	0
6.	Фон	0	22	200	0	0	0
7.	Алленде	10,5	30	45	5	2	1
8.	Аналог	10	30	70	0	0	0
9.	Свинец	150	30	5	0	0	0
10.	Фон	0	30	50	0	0	0

В последних трех столбцах помещены данные о числе зарегистрированных событий с кратностью два, три и четыре. Результаты, приведенные в строках с первой по шестую, были получены ранее ^{2,18-20/}, остальные результаты получены в измерениях на улучшенной установке.

2. Для определения уровня фона от спонтанного деления примеси урана готовились представительные пробы материала метеорита Алленде весом около одного грамма. Пробы облучались нейтронами в активной зоне реактора, после чего химически выделялся ²³⁹Np и регистрировались рентгеновские и ядерные γ -линии, сопровождающие распад этого изотопа. Определение содержания урана производилось также путем измерения альфа-активности ²¹⁰Po, выделяемого из исследуемых проб методом возгонки. Эффективность выделения нептуния и полония контролировалась. Чувствительность обоих методов анализа позволяла определять примесь урана в образцах при концентрации 10^{-9} г/г. Проведенные анализы дали величину концентрации урана в изученных образцах метеорита Алленде, равную $1-3 \cdot 10^{-8}$ г/г, что находится в согласии с измерениями других авторов.

Таким образом, фон, обусловленный спонтанным делением урана, мог составлять не более одного события за 60 суток с кратностью два при измерениях на улучшенном детекторе, обладавшем эффективностью $\bar{\epsilon} = 30\%$.

3. Специальные меры были приняты для исключения опасности появления фона от спонтанного деления искусственных трансурановых изотопов.

В Лаборатории ядерных реакций в виде открытых мишеней использовались только меченые изотопы плутония и юрия, для которых отношение числа альфа-распадов к числу спонтанных делений превышало 10^4 . Препараты калифорния применялись только в виде ампулированных источников. Оценки показывают, что смесь техногенных изотопов, которые в принципе могли бы попасть на поверхность метеоритов с атмосферными осадками, должна характеризоваться отношением числа альфа-распадов к числу спонтанных делений, превышающим 10^7 .

Измерения альфа-активности проб, взятых с поверхности образцов метеоритов, показали, что фон от техногенных трансурановых изотопов в условиях наших экспериментов не превышал одного спонтанного деления в год.

4. Для оценки вклада в наблюдающуюся активность фона от взаимодействия космических мюонов с материалом образца и стен камеры в шахте проводились измерения множественной эмиссии нейтронов из свинцовых блоков. Результаты этих измерений приведены в пятой и девятой строках таблицы. За 20 суток не было зарегистрировано ни одного события множественной эмиссии нейтронов. Наряду с этим были проведены измерения множественной эмиссии нейтронов для образца, аналогичного по составу веществу метеоритов типа хондритов. Этот образец был приготовлен из смеси особо чистых химических реактивов. В результате за 70 суток измерений также не было зарегистрировано ни одного события множественной эмиссии нейтронов /см. восьмую строку таблицы - аналог/. Измерения с образцами метеорита Алленде и с их аналогом проводились поочередно сеансами длительностью по 7 суток.

Таким образом, проведенные контрольные эксперименты показывают, что суммарный вклад в наблюдаемый эффект фона от спонтанного деления примеси урана и техногенных /лабораторных и атмосферных/ трансурановых изотопов, фона от взаимодействий космических мюонов, а также фона от аппаратурных эффектов, не превышает трех событий из общего числа 42 зарегистрированных событий с кратностью 2, 3 и 4.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для объяснения обнаруженного эффекта множественного испускания нейтронов необходимо допустить наличие в изученных образцах метеоритов какого-то долгоживущего спонтанно делящегося нуклида.

Ввиду того, что в экспериментах регистрировались не просто акты деления, а отмечалась кратность срабатывания гелиевых счетчиков, представляется возможным получить оценку среднего числа мгновенных нейтронов, испускаемых при делении этого нуклида. Такая оценка была сделана на основании данных, полученных для метеорита Алленде. Используя методы дисперсионного анализа для удельных активностей спонтанного деления, оцениваемых на основании данных, приведенных в таблице, можно указать доверительный интервал для величины $\bar{\nu}$: $4 < \bar{\nu} < 10$ с надежностью 95%. Результаты для метеоритов Саратов и Ефремовка, приведенные в первой и четвертой строках таблицы, также укладываются в этот интервал значений $\bar{\nu}$.

Нетрудно видеть, что эти значения $\bar{\nu}$ не могут быть отнесены к урану ($\bar{\nu} = 1,99$), их также трудно отнести к более тяжелым известным спонтанно делящимся изотопам ^{248}Cm ($\bar{\nu} = 2,98$) и ^{252}Cf ($\bar{\nu} = 3,75$).

Полученные данные позволяют оценить по порядку величины концентрацию этого нуклида в изученных образцах. Предположив, что его период полураспада равен 10^9 лет, получим концентрации $3 \cdot 10^{-15}$ - $3 \cdot 10^{-14}$ г/г для различных метеоритов. Это соответствует содержанию $6 \cdot 10^9$ - $6 \cdot 10^{10}$ атомов в одном килограмме вещества*.

Таким образом, экспериментальные данные, приведенные в настоящей работе, свидетельствуют об обнаружении в образцах метеоритов Ефремовка, Алленде и Саратов не известного ранее долгоживущего нуклида, испытывающего спонтанное деление. Нам представляется, что наиболее вероятным будет предположение о принадлежности этого нуклида к области сверхтяжелых элементов. Для дальнейшего изучения его свойств, определения массы и порядкового номера необходимо произвести концентрирование активности из значительно большего количества метеоритного вещества.

* Учитывая $4 < \bar{\nu} < 10$, получаем для образцов Алленде 10-20 спонтанных делений в год.

Авторы благодарны Ю.Т.Чубуркову, А.Адамеку, Х.Геггелеру за разработку методов анализа урана в образцах и Хайди Геггелер за помощь в проведении этих анализов.

Авторы выражают глубокую благодарность Р.С.Кларку /Музей естественной истории США/ и Е.Л.Кринову за предоставление уникальных образцов для исследований, Ю.Ц.Оганесяну и И.Зваре - за проведение плодотворных и полезных дискуссий.

ЛИТЕРАТУРА

1. Флеров Г.Н. и др. ЯФ, 1974, 20, с.472.
2. Flerov G.N., in Proc. Int. Conf. on Reactions between Complex Nuclei, Nashville, USA, 1974, v.2, p. 459.
3. Hermann G., Inorganic Chemistry, Series 2, v.8 Radiochemistry, ed. A.G. Maddock, p.221, 1973.
4. Gentry R.V., Cahill T.A., Fletcher N.R., Kaufmann H.C., Medsker L.K., Nelson J.W. and Flocchini N.G. Phys. Rev. Lett., 1976, 37, 11.
5. Флеров Г.Н. и др. ЯФ, 1974, 20, с.639.
6. Флеров Г.Н. и др. ЯФ, 1975, 21, с.9.
7. Чубурков Ю.Т. и др. Радиохимия, 1974, 16, с.827.
8. Виноградов А.П. Геохимия, 1961, 1, с.1.
9. Handbook of Elemental Abundances in Meteorites, ed. B. Mason, Series on Extraterrestrial Chemistry, 1971, v.1, New York.
10. Келлер О.Л. Радиохимия, 1975, 17, с.609.
11. Anders E., Heymann P. Science 1969, 164, 821.
12. Даковский М. Изв. АН СССР, сер. физ., 1969, 33, с.1256.
13. Dakowski M. Earth Planetary Sci. Lett., 6, (1969) 152.
14. Sabu P.P., Manuel O.K. Nature, 1976, 262, 28.
15. Lewis R.S., Srinivasan B., Anders E. Science, 1975, 190, 1251.
16. Anders E., Higuchi H., Gros J., Takahashi H., Morgan J.W., Science, 1975, 190, 1262.
17. Stoughton R.W., Halperin J., Drury J.S., Perey F.G., Maclin R.L., McCarthy J.H., Sherwood D.W. Nature Phys. Sci., 1973, 246, 26.
18. Popoko A.G., Skobelev N.K., Ter-Akopyan G.M., Goncharov G.N. Phys. Lett., 1974, 52B, 417.
19. Попеко А.Г. и др. ЯФ, 1975, 21, с.1220.
20. Flerov G.N. in Proc. 3rd Int. Conf. on Nuclei far from Stability, Cargese, France, 1976, CERN 76-13, p.542, 1976.

Рукопись поступила в издательский отдел
11 апреля 1977 года.