

103/1-71

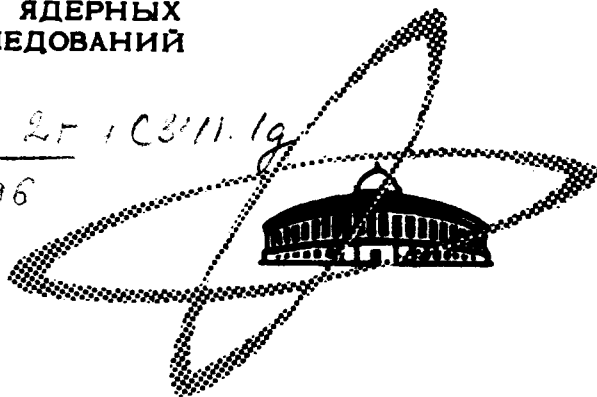
ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

СЗ41 2Г + СЗ11.1g

К-96

P6 - 5307



В. Куш, В.И. Чепигин, Г.М. Тер-Акопьян,  
С.Д. Богданов

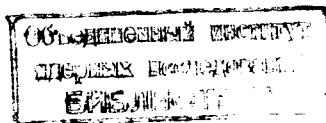
ИССЛЕДОВАНИЕ СЛАБЫХ  $\alpha$  -АКТИВНОСТЕЙ  
ЛЕТУЧИХ ФРАКЦИЙ СВИНЦОВО-ЦИНКОВОЙ  
РУДЫ МЕТОДОМ  $\alpha$ -X -СОВПАДЕНИЙ

Р6 - 5307

В. Куш, В.И. Чепигин, Г.М. Тер-Акопьян,  
С.Д. Богданов

ИССЛЕДОВАНИЕ СЛАБЫХ  $\alpha$  -АКТИВНОСТЕЙ  
ЛЕТУЧИХ ФРАКЦИЙ СВИНЦОВО-ЦИНКОВОЙ  
РУДЫ МЕТОДОМ  $\alpha$ -X -СОВПАДЕНИЙ

Направлено в АЭ



## 1. Введение

Уже давно имеются сообщения об идентификации в рудах и минералах очень слабых долгоживущих альфа-активностей, энергии которых не укладываются в рамки известной систематики.

Так, например, Джоли <sup>/1/</sup> в 1924 году при исследовании плеохронических ореолов обнаружил альфа-линию с энергией 3,14 Мэв; Цигерт <sup>/2/</sup> в 1928 году в препаратах, выделенных из цинковой руды, наблюдал альфа-активность с энергией 1,2, 2,2 и 3,4 Мэв. Из работ, выполненных в предвоенные годы, заслуживает внимания работа Шинтельмейстера <sup>/3/</sup>. Определив в шлаке от переработки цинковой руды альфа-активность с энергией 3,1 и 4,5 Мэв, он установил, что химические свойства излучателя аналогичны свойствам осмия.

Синтез трансурановых элементов привел к значительному расширению систематики альфа-распада и стимулировал развитие измерительной техники. Гипотеза о том, что нептуний, плутоний, и, возможно, более тяжелые трансурановые элементы могут существовать в природе вследствие захвата нейтронов ураном, нашла подтверждение в работах Сиборга и Перлмана <sup>/4/</sup>, которые обнаружили <sup>239</sup>Pu в урановых рудах, и

Пеппарда /5/, который доказал существование  $\alpha$ -активности  $^{237}\text{Np}$ . Новые данные, однако, не разъяснили старой проблемы, а только расширили интервал тематики.

За последние двадцать лет исследованием слабой альфа-активности в природе занимались Пеппард /5/, И. Кюри /6/, Чердынцев с сотрудниками /7,8/, Адамс и сотрудники /9/, Джентри /10,11/.

Главной проблемой являлось избыточное и сильно меняющееся количество  $^{239}\text{Pu}$  в разных рудах и минералах.

Пеппард /5/, измеряя отношение активности  $\text{Pu}/\text{U}$  в урановых рудах Конго, пришел к выводу, что оно слишком велико для объяснения захватом нейтронов, и высказал гипотезу о возможном происхождении избыточного количества плутония в результате распада выживших трансурановых элементов.

Более точные расчеты потока нейтронов, сделанные Левиным и Сиборгом /12/, показали, что небольшая примесь  $\text{Be}$ ,  $\text{Li}$ ,  $\text{B}$  меняет поток нейтронов за счет реакции  $(\alpha, n)$  даже на два порядка. Однако Девис и Мюхартор /13/, изучая в 1962 году отношение  $\text{Pu}/\text{U}$ , не нашли при этом в руде эквивалентных количеств  $^{238}\text{U}$ , который должен был бы синтезироваться в том же потоке нейтронов.

Это утверждение уменьшило сомнение в правильности определения потока нейтронов и опять привлекло внимание к проблеме избытка  $^{239}\text{Pu}$  в урановых рудах.

Исследования слабых альфа-активностей руд и минералов проводились с 1960 года Чердынцевым с сотрудниками. Изучая изотопный состав урановых руд, они обнаружили слабую альфа-активность с энергией 4,4–4,6 Мэв, которую первоначально приписали  $^{247}\text{Cm}$ .

Альфа-линия 4,4 Мэв была обнаружена Черри и др. /9/ в торитах. Вопрос идентификации этой линии авторы были вынуждены оставить открытым, утверждая, однако, что она не может принадлежать ни  $^{247}\text{Cm}$  (несогласие энергии), ни  $^{235}\text{U}$  (слишком большая интенсивность).

Изучая плеохроические гало в биотитах, Джентри обнаружил следы ряда слабых альфа-активностей, например,  $^{211}\text{Bi}$  /10/,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ,  $^{218}\text{Po}$ . Кроме этого им были обнаружены ореолы, соответствующие альфа-излучателю с энергией 4,5 Мэв /11/.

Появление ряда теоретических работ, в которых обсуждается возможность существования долгоживущих тяжелых ядер с атомным номером 110-114 /14/, усилило интерес и внимание к неидентифицированным слабым альфа-активностям в природе.

В частности, Чердынцев и др. /8/ делают попытку объяснить наблюдавшуюся ими слабую альфа-активность с энергией 4,4-4,6 Мэв распадом изотопа сверхтяжелого эка-осмия ( $Z = 108$ ).

В последнее время была опубликована работа группы из Бамберга /15/ в которой показано, что в осмий-иридиевых пробах различного происхождения, наряду с радиоактивными элементами естественных распадных рядов, проявляется  $\alpha$ -активность в диапазоне 4,3-4,6 Мэв и  $\gamma$ -излучение с энергией 200-220 кэв.

Этот короткий обзор показывает, что вопрос об идентификации следов альфа-активных сверхтяжелых элементов в земных породах остается открытым. Результаты исследования слабых альфа-активностей и, в некоторой степени, химические данные позволяют допустить возможность существования альфа-активных сверхтяжелых элементов в природе, однако, применяемая экспериментальная методика не может пока дать однозначные результаты.

В нашей работе, несмотря на слабые активности образцов, мы решили применить метод  $\alpha - X$ -совпадений для идентификации атомного номера исследуемых изотопов.

## II. Эксперимент

Возгоняющаяся фракция свинцово-цинкового концентрата была подвергнута химической процедуре, с целью выделения осмия. Летучие продукты из пыли, конденсированные в ловушке с жидким азотом, растворились в азотной кислоте с добавкой перекиси водорода. После нагрева до  $100^{\circ}\text{C}$  и повторной конденсации наиболее летучие продукты, собранные на подложку, содержали  $\alpha$ -активность с интенсивностью 4 распада/мин. на 1 мг. <sup>х)</sup>

На рис. 1 показан спектр источника, снятый с помощью альфа-спектрометра с полупроводниковым поверхностно-барьерным Si-Au детектором. Время экспозиции 21 час. Видна одна четкая альфа-линия с энергией 4,78 Мэв. Большая ширина пика свидетельствует о большой толщине источника, который трудно было подвергать радиохимической обработке, не зная химической природы излучателя. Попытки измерить время жизни излучателя не привели к положительным результатам, так как оно оказалось очень большим.

Для измерения альфа-спектра применялась специальная электроника с записью на тысячеканальный анализатор. Вся система была охвачена единой схемой стабилизации. Разрешающая способность аппаратуры при суточной экспозиции определялась, в основном, качеством Si-Au детектора и была не хуже 50 кэв.

В дальнейших измерениях мы пользовались спектрометром совпадений. Рентгеновское излучение измерялось Si(Li) детектором с толщиной эффективного слоя 2,4 мм, охлажденным до температуры  $-110^{\circ}\text{C}$ . Для регистрации альфа-частиц применялся поверхностно-барьерный Si-Au детектор с площадью  $3,2 \text{ см}^2$ . Схема совпадений разрешала регистрацию Si(Li) детектором только в случае появления импульса от альфа-частицы с энергией выше 4 Мэв.

<sup>х)</sup> Авторы благодарят О.Д. Маслова и В.Я. Выропаева за проведение химических экспериментов.

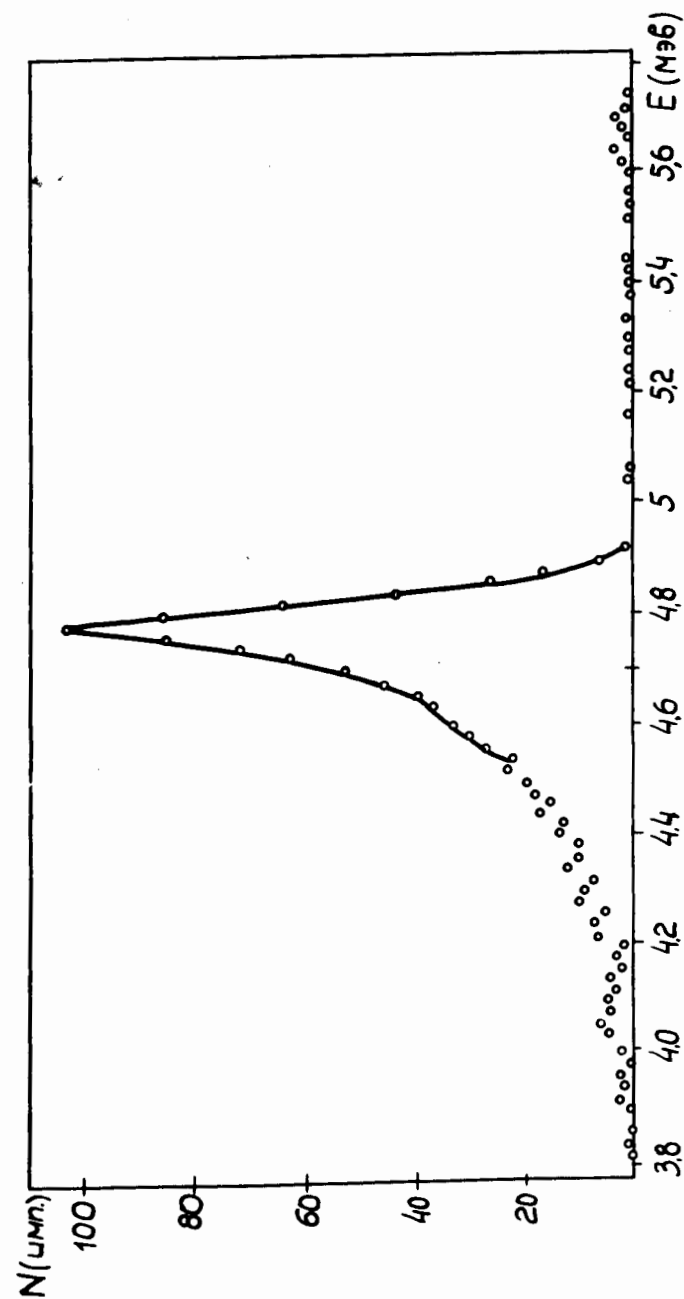


Рис. 1. Альфа-спектр исследуемого образца, измеренный с помощью Si-Au детектора. Время измерения 21 час.

Для калибровки  $\gamma$ -тракта использовались изотопы  $^{241}\text{Am}$  и  $^{109}\text{Gd}$  ( $L_\alpha$  -13,96 кэв,  $L_\beta$  -17,76 кэв,  $L_\gamma$  -20,8 кэв и  $K_\alpha$  -22,1 кэв,  $K_\beta$  -25 кэв,  $E_\gamma = 26,37$ ,  $E_\gamma = 59,57$  кэв). Правильность работы спектрометра и эффективность регистрации совпадений проверялись с помощью источника естественного урана. Большая площадь детекторов и малое расстояние источника от детекторов (1мм) обеспечивало хорошую геометрию для регистрации совпадений.

Разрешающая способность спектрометра рентгеновских лучей при недельной экспозиции была не хуже 2,5 кэв. Дрейф калибровочных пиков в интервале 10-30 кэв был не более 0,7 кэв за неделю.

Эффективность регистрации рентгеновского излучения в ожидаемых пределах энергии для  $L$ -линии (10-20 кэв) была близка к 100%, так что даже при низкой  $\alpha$ -активности (в наших случаях 4 распада/мин.) можно было надеяться на "разумный" счет совпадений, при предположении существования альфа-переходов на возбужденные состояния дочернего ядра с большим коэффициентом внутренней конверсии.

Первая серия измерений позволила установить, что мы имели дело с излучателем, испускающим  $\alpha$ -частицы в возбужденные состояния, вследствие чего в нашем спектре появляются 4 линии в области 10-30 кэв. На основании энергии двух сильных линий ( $L_\alpha$ ,  $L_\beta$ ) можно было установить, что атомный номер неизвестного элемента  $Z = 93 \pm 1$ .

Во второй серии измерений мы решили сравнить спектр нашего источника со спектром известных  $\alpha$ -излучателей в этой области  $Z$ . Этот метод позволяет исключить расчеты эффективности регистрации. Рис. 2 показывает рентгеновские спектры урана, нептуния-237, плутония-238 и нашего источника, на основе которых можно было сделать вывод, что найденная  $\alpha$ -активность принадлежит нептунью-237.

В таблице 1 указаны интенсивности линии рентгеновского излучения  $^{237}\text{Np}$  и нашего источника. Отношение интенсивности отдельных

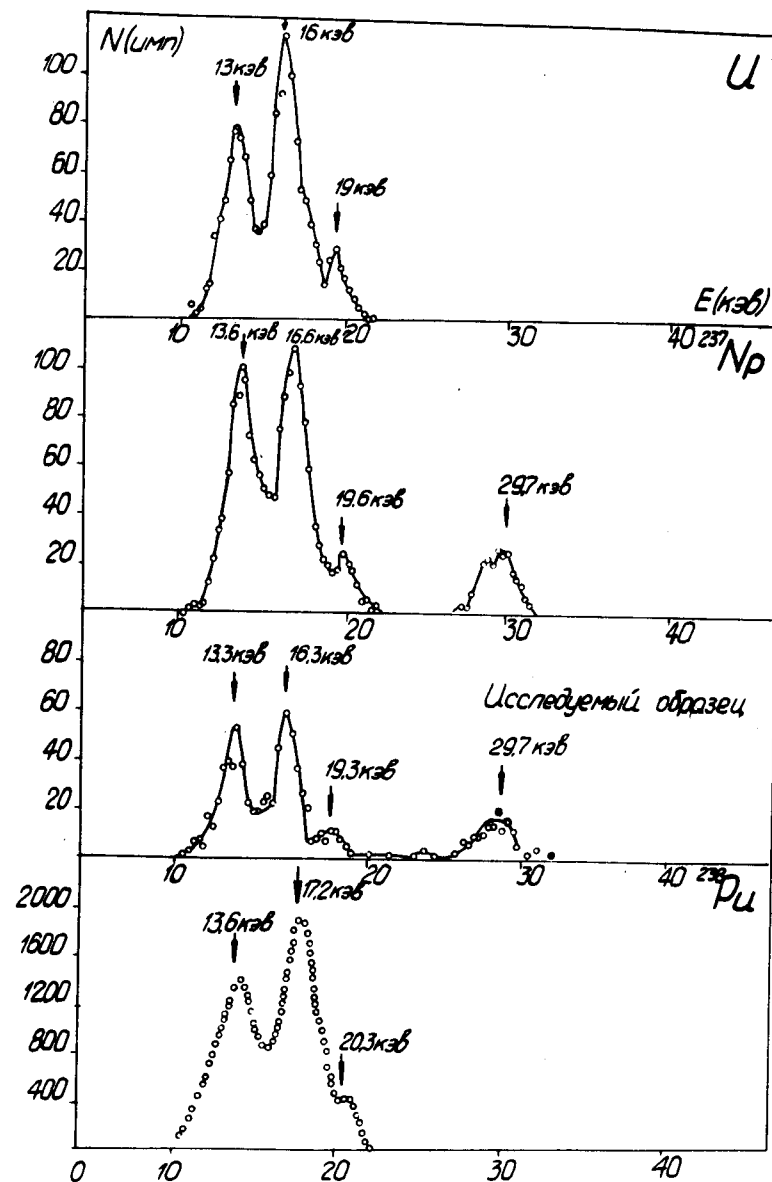


Рис. 2. Спектр рентгеновского излучения источников урана, нептуния-237, плутония-238 и исследуемого образца. Применялся Si(Li)-детектор.

линий подтверждает нашу идентификацию, так же как и отношение интенсивности совпадений к интенсивности альфа-счета. Некоторое превышение интенсивности L-серии для калибровочного препарата  $^{237}\text{Np}$  связано с присутствием в этом препарате примеси  $^{239}\text{Pu}$ . Количество примеси было таково, что интенсивность распадов  $^{239}\text{Pu}$  была равна половине интенсивности непутия. В последней колонке таблицы приводятся интенсивности линий L-серии калибровочного источника, исправленные на величину вклада примеси плутония.

### Обсуждение результатов

Наблюдение непутия-237 в свинцово-цинковом концентрате не следует рассматривать как нечто необычное. Оценки, полученные на основе факторов обогащения в процессе переработки исходной руды, показывают, что в исходном концентрате содержание непутия не превышало  $10^{-11}$  весовых процентов. Такая примесь непутия, по-видимому, соответствует количеству техногенного непутия на Земле.

Данные, полученные в настоящей работе, должны обратить внимание авторов, исследующих слабые альфа-активности земных пород, на возможность маскировки настоящего эффекта или даже имитирования эффекта техногенным непутием. Слабые активности и большая толщина образцов приводят к большим статистическим ошибкам и к уширению спектра. Если учесть также возможную нестабильность аппаратуры, которая может проявиться при многосуточных измерениях (это видно на примере двух спектров, представленных Чердынцевым и др. /8/), то становится ясным, что все три фактора могут дать в сумме довольно большую погрешность в измерении энергии альфа-частиц. Недостаточно точно определенная энергия и отсутствие информации о времени жизни предоставляет широкое поле для необоснованных спекуляций.

Таблица 1

Отношение интенсивности	исслед. образец	$^{237}\text{Np}$ источник	$^{237}\text{Np}$ источник (с поправкой)	$^{237}\text{Np}$ расчет [17]
$f_{\alpha}/f_{\alpha-x}$	$10,8 \pm 10$	$8,5 \pm 0,9$	$10,9 \pm 1,1$	9,2
$f_{\alpha}/f_{\alpha-x}$	$6,0 \pm 8$	$5,5 \pm 1,0$	$6,5 \pm 1,2$	64,5
$f_{\alpha-x}/f_{\alpha-x}$	$6,4 \pm 1,0$	$6,5 \pm 1,0$	$6,4 \pm 1$	7,1

Отношение интенсивностей для исследуемого образца и источника непутия-237.  $f_{\alpha}$  - количество зарегистрированных  $\alpha$ -частиц,  $f_{\alpha-x}$  - количество квантов рентгеновского и гамма-излучений, зарегистрированных в совпадении с  $\alpha$ -частичками. Четвертая колонка - отношение интенсивностей источника с поправкой на вклад плутония-239, последняя колонка - расчет по данным /16/.



Применение метода  $\alpha$ -X совпадений, по нашему мнению, исключает эту опасность.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность академику Г.Н. Флерову за предложение данной темы и постоянный к ней интерес. Авторы благодарят О.Д. Маслова за помощь в работе.

#### Л и т е р а т у р а

1. J. Joly. Naturwiss., 12, 693 (1924).
2. M. Ziegert. Z. Phys., 46, 668 (1928).
3. J. Schintelmeister. Sitz. Ber. Österr. Akad. Wiss. 144 11a, 475 (1935).
4. G. Seaborg, I. Perlman. J. Amer. Chem. Soc., 70, 1571 (1948).
5. D.S. Peppard. J. Amer. Chem. Soc., 74, 60 (1952).
6. I. Curie, Частное сообщение проф. М. Гайсинского.
7. В.В. Чердынцев, В.Ф. Михайлов. Геохимия 1, 1 (1963).
8. В.В. Чердынцев, В.Л. Зверев, В.М. Купцов, Г.И. Кислицина. Геохимия 4, 395 (1968).
9. R.D. Cherry, K.A. Richardson, J.A.S. Adams. Nature, 202, 639 (1964).
10. R.V. Gentry. Appl. Phys. Letters, 8, 65 (1966).
11. R.V. Gentry. Bull. Amer. Phys. Soc., 12, 32 (1967).
12. C.A. Levine, G.T. Seaborg. J. Amer. Chem. Soc., 73, 3278 (1951).
13. W.D. Davis, J.L. Mewherter. Geochim. et. Cosmochim. Acta 26, 681 (1962).
14. Ю.А. Музычка, В.В. Пашкевич, В.М. Струтинский, Препринт ОИЯИ P7-3733, Дубна, 1968. S.G. Nilsson, J.R. Nix, A. Sobiczewski, Z. Szymanski, S. Wycech, C. Gustafson, P. Möller. Nucl. Phys., A115, 545 (1968).
15. H. Meier, W. Albrecht, D. Bösche, W. Heckert, P. Menge, A. Ruckdeschel, E. Unger, G. Zeitler, E. Zimmerhackl. Zeitschrift für Naturforschung, 25, 79 (1970).
16. C.M. Lederer, J.M. Hollander, I. Perlman. Table of Isotopes, ed. J. Wiley, 1967.

Рукопись поступила в издательский отдел

4 августа 1970 года.