

Ф-716

13/III 74

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



970/2-74

P6 - 7588

Г.Н.Флеров, Г.М.Тер-Акопян, Н.К.Скобелев,
А.Г.Попеко, М.П.Иванов

ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО ПОИСКУ В ПРИРОДЕ
СПОНТАННО ДЕЛЯЩИХСЯ НУКЛИДОВ
СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

I

1973

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

Р6 - 7588

Г.Н.Флеров, Г.М.Тер-Акопьян, Н.К.Скобелев,
А.Г.Попеко, М.П.Иванов

ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО ПОИСКУ В ПРИРОДЕ
СПОНТАННО ДЕЛЯЩИХСЯ НУКЛИДОВ
СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

I

Направлено в ЯФ

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

S u m m a r y

After analysing various methods applied in search for superheavy elements in nature it was shown that the method based on the recording the rare events of spontaneous fission in samples is one of the most sensitive and universal. Large proportional counters of fission fragments and neutron detectors of multiple neutron emission are described. The upper limits for the superheavy element concentration in the samples of the bismuth hydroxide ($2.5 \cdot 10^{-13}$ g/g), lead ($4 \cdot 10^{-15}$ - $5 \cdot 10^{-16}$ g/g), mercury ($1.4 \cdot 10^{-14}$ - $1.4 \cdot 10^{-15}$ g/g) and tungsten ($1.4 \cdot 10^{-14}$ - $2.5 \cdot 10^{-15}$ g/g) are determined under the condition that the half-life of the element under search is equal to 10^9 years.

1. АНАЛИЗ МЕТОДОВ, ПРИМЕНЯЕМЫХ ДЛЯ ПОИСКОВ СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Интерес к проблеме поиска сверхтяжелых элементов, возникший в связи с предсказаниями теоретических работ /см., например, /1-4//, привлек усилия ряда научных групп. Эксперименты проводятся уже более пяти лет, развиты высокочувствительные методы, изучены сотни образцов. В целом результаты поисков пока отрицательны: сейчас уже очевидно, что если один из сверхтяжелых элементов существует в природе, то его концентрация в наиболее "удачных" объектах будет меньше чем 10^{-12} грамм на грамм. Поэтому задача поисков сверхтяжелых элементов представляется с течением времени все более сложной. Однако имеются возможности существенного повышения чувствительности методик, и это стимулирует дальнейшее развитие работ.

Объектами поисков сверхтяжелых элементов являются различные образцы земного и космического происхождения, а также космические лучи. Фаулер ^{/5/} первым обратил внимание на то, что тщательное исследование массовых спектров первичных космических лучей открывает перспективу для поисков потоков ядер сверхтяжелых элементов, приходящих на Землю из Галактики. Сообщалось ^{/5/} об обнаружении в слоях фотоземли, экспонированной в верхних слоях земной атмосферы, одного или, быть может, двух следов атомных ядер с $Z \approx 105$. Правда, дальнейшее развитие опытов ^{/6/} с применением, наряду со слоями фотоземли, полимерных пленочных детекторов привело к существенному снижению оценки

верхней границы потока космических ядер для элементов с порядковыми номерами больше ста. Эта граница, по-видимому, не превышает величины $1 \text{ атом}/\text{м}^2 \text{ год}$, что приводит к серьезным трудностям в опытах с полимерными и эмульсионными детекторами даже при запуске их на спутниках. Отгонсурэн и Перелыгин ^{/7/} недавно проанализировали возникающие трудности и в то же время обосновали перспективность поисков следов космических ядер сверхтяжелых элементов в метеоритных минералах.

При поисках сверхтяжелых элементов в земных и космических образцах применялись различные чувствительные методы анализа. В работе Томпсона и др. ^{/8/} для поисков эка-платины использовался рентгеновский флуоресцентный анализ, масс-спектрометрия и активационный анализ. Была достигнута чувствительность 10^{-11} грамм на грамм. Активационный анализ в различных вариантах применялся в ряде работ. Веселовски и др. ^{/9/} и Виттенбах ^{/10/} проводили опыты, в которых исследуемые образцы облучались в потоках тепловых нейтронов и измерялась энергия осколков деления ^{/9/} или регистрировались запаздывающие нейтроны ^{/10/}. Авторы пришли к выводу, что концентрация искомым элементов в изученных образцах не превышает $6 \cdot 10^{-12}$ ^{/9/} и $9 \cdot 10^{-11}$ ^{/10/} грамм на грамм. Однако такая чувствительность установлена при весьма неправдоподобном предположении о величине поперечного сечения деления сверхтяжелых ядер тепловыми нейтронами /500 барн/. Форслинг и др. ^{/11/} и Поликанов и др. ^{/12/} применяли реакцию захвата тепловых нейтронов ^{/11/} и фрагментацию на протонах высокой энергии ^{/12/} с целью получения короткоживущих спонтанно делящихся или альфа-активных продуктов. В этих опытах была определена верхняя граница концентрации сверхтяжелых элементов в исследованных образцах: 10^{-12} грамм на грамм. Совински и др. ^{/13/} сообщали об опытах, в которых с помощью масс-сепаратора из исследуемых образцов выделялись атомные ядра с массой около 300. Затем продукты масс-сепарации помещались в контакт с особо чистыми кварцевыми пластинками и облучались в потоках быстрых нейтронов. Авторы ^{/13/} уделяли особое внимание поиску на кварцевых детекторах следов тройного деления,

как наиболее характерного для сверхтяжелых элементов. При этом предположении они установили верхнюю границу концентрации сверхтяжелых элементов для нескольких образцов: 10^{-15} грамм на грамм. В случае преобладания двойного деления эта граница - 10^{-12} грамм на грамм.

Большое число исследований связано с попытками обнаружения неизвестных ранее слабых природных активностей альфа-распада или спонтанного деления. В разное время в работах Шинтельмейстера ^{/14/}, Чердынцева и др. /см. ^{/15/}, Черри, Ричардсона и Адамса ^{/16/} и Мейера и др. ^{/17/} появлялись сообщения об обнаружении неизвестной альфа-активности с энергией 4,4 - 4,6 МэВ в сульфидных ^{/14,15/} и платиновых ^{/17/} рудах, а также в ряде вулканических образцов ^{/15/} и в граните ^{/16/}. На основании химических опытов эта активность приписывалась эка-осмию /Z = 108/. Однако более поздние попытки воспроизвести результаты большинства перечисленных работ оказались безуспешными ^{/18-21/}. Не исключено ^{/18/}, что в ^{/14-17/} наблюдался распад каких-либо известных естественных или техногенных альфа-излучателей. Из-за наличия в природе целого ряда таких излучателей эксперименты по поиску сверхтяжелых элементов, основанные на регистрации их альфа-распада, сильно затруднены. Чувствительность таких экспериментов зависит от применяемой химической процедуры. Оценка показывает, что в упомянутых выше работах она соответствовала пределу концентрации 10^{-10} - 10^{-11} грамм на грамм.

Метод поисков сверхтяжелых элементов по их спонтанному делению обладает хорошей чувствительностью благодаря тому, что в природе существует только один спонтанно делящийся излучатель - уран. Оценки показывают, что фоном от техногенных спонтанно делящихся изотопов плутония, кюрия и калифорния в подавляющем большинстве случаев можно пренебречь. Таким образом, в первом приближении задача поисков сводится к регистрации редких актов спонтанного деления и к выяснению их связи с распадом урана или с другими возможными источниками фона. Можно ожидать, что такая постановка задачи является достаточно универсальной. Действитель-

но, если не сами долгоживущие нуклиды, то их дочерние продукты должны испытывать с вероятностью, практически равной единице, спонтанное деление /см. результаты расчетов /²⁻⁴/ /. Максимальная чувствительность при поиске новых элементов достигается для таких изотопов, у которых период полураспада близок по величине к 10^9 лет. Если самый долгоживущий изотоп из "острова стабильности" в районе $Z = 110-114$ имеет период полураспада менее $2 \cdot 10^8$ лет, то обнаружить его в природе практически невозможно, его следует считать полностью "вымершим". Если же допустить, что в районе $Z = 110-114$ имеется изотоп с периодом полураспада, существенно большим чем 10^9 лет, например $T_{1/2} = 10^{11}$ лет, то возможность его обнаружения будет снижена. Однако в таком случае по соседству с этим изотопом должны существовать другие изотопы с более короткими временами жизни, среди которых будут и максимально удобные для обнаружения изотопы с периодом полураспада, близким к 10^9 лет.

Первые эксперименты по поиску редких актов спонтанного деления были проведены Флеровым и Перелыгиным /²²/ с помощью трековых детекторов. Наибольшее внимание было уделено свинцовым стеклам, которые, имея достаточно большой возраст /5 - 200 лет/, могли аккумулировать значительное число следов осколков деления. Изучение ряда свинцовых стекол, ртутных зеркал, а также стекол, содержащих примеси висмута, вольфрама и таллия, было проведено Цесьляк /²³/. Как показал последующий анализ, выполненный Флеровым, Перелыгиным и Отгонсурэном /²⁴/, чувствительность подобного метода ограничена не только фоном от спонтанного деления примесей урана, но также и фоном от вынужденного деления тяжелых металлов, составляющих основу образцов, ядерно-активной компонентой комических лучей. Правда, роль вынужденного деления может быть сведена до минимума, если рассматривать образцы стекол, которые находились в защищенных помещениях. Для некоторых образцов свинцовых стекол в /^{22, 23}/, возможно, наблюдалась избыточная активность спонтанного деления, которая может быть объяснена примесью сверх-

тяжелого аналога свинца на уровне, соответствующем $T/C \approx 1,5 \cdot 10^{21}$ лет. Здесь T/C - период полураспада сверхтяжелого элемента, выраженный в годах, C - концентрация этого элемента в образце *. Для большинства образцов свинцовых стекол, а также для ртутных зеркал и для стекол, содержащих висмут, вольфрам, был получен предел: $T/C \geq 10^{22}$ лет.

Определенные возможности для поисков сверхтяжелых элементов открываются при изучении следов осколков деления, аккумулированных в природных минералах /²⁵⁻³¹/. При этом, однако, необходимо учитывать возможность регрессии треков на протяжении больших периодов времени /сотни миллионов и миллиарды лет/. С другой стороны, представляет опасность миграция примесей урана, что затрудняет определение уровня фона. На эти аспекты было обращено внимание в работах Отгонсурэна и др. /^{25, 26, 31}/ . Далее, при поисках следов осколков в минералах, входящих в космические тела /^{28, 29}/, следует учитывать фон от вынужденного деления космическими лучами висмута, свинца, таллия и других тяжелых металлов. Как показывают оценки, этот фон в космическом пространстве должен превышать в среднем на два-три порядка фон от спонтанного деления урана. Следует отметить, что при изучении природных минералов в практически идеальной кристаллической форме следует принимать во внимание возможность их естественной очистки от примесей посторонних химических элементов. Прайс, Флайшер и Вудс /²⁷/ и Хаак /³⁰/ в результате изучения ряда специфических минералов получили предельные данные для содержания эка-свинца / $T/C \geq 3 \cdot 10^{23}$ лет /, /^{27, 30}/, эка-золота / $T/C \geq 3 \cdot 10^{25}$ лет /, /²⁷/ и эка-висмута / $T/C \geq 3 \cdot 10^{26}$ лет /, /³⁰/ . По-видимому, эти предельные цифры

* Иногда для выражения полученного результата применяют понятие кажущегося периода полураспада легкого аналога искомого элемента /например, свинца/: $T_{\text{каж.}} = T/C$, где C - концентрация этого элемента в свинце. Однако в тех случаях, когда свинец или другие тяжелые металлы не составляют основу изучаемых образцов, применение понятия $T_{\text{каж.}}$ не оправдано.

преждевременно относить к содержанию перечисленных элементов в земной коре.

Помимо образования радиационных дефектов, проявляющихся при травлении в виде треков, спонтанное деление сверхтяжелых элементов должно приводить как кумулированию в природных минералах осколков деления. Это должно проявиться в различных изотопных аномалиях. В частности, стала довольно распространенной гипотеза о происхождении избытка тяжелых изотопов ксенона в некоторых классах метеоритов от деления сверхтяжелых элементов /32,33/. Шуколоков, Герлинг и Ашкинадзе /34/ использовали анализ изотопного состава ксенона как метод поиска сверхтяжелых элементов в земных образцах и достигли чувствительности на уровне $T/C = 10^{21}$ лет. Основная трудность этого метода связана с тем, что изотопный состав ксенона в природных объектах подвержен вариациям, причины которых окончательно не поняты /см. например, /35,36/ /.

Наиболее прямой путь поисков сверхтяжелых элементов, по-видимому, связан с непосредственной регистрацией редких актов спонтанного деления. Флеров и др. /37,45/ применили с этой целью пропорциональные счетчики с большой площадью исследуемых образцов. Флеров, Перельгин и Отгонсурэн /22,24/ и Гейслер, Филипс и Уокер /50/ регистрировали редкие события спонтанного деления с помощью полимерных пленок. В обоих случаях была достигнута чувствительность на уровне $T/C = 10^{22}$ лет. Рейст, Хан и фон Гунтен /38/ использовали для регистрации осколков деления оригинальные счетчики - "спинеры" и нашли следующие пределы отношения T/C : для платины - $3 \cdot 10^{21}$ лет, золота - $3,4 \cdot 10^{21}$ лет, ртути - $2 \cdot 10^{22}$ лет, таллия - $1,1 \cdot 10^{21}$ лет, свинца - $2 \cdot 10^{22}$ лет, висмута - $9 \cdot 10^{20}$ лет.

В ряде работ /39-45/ для регистрации редких атомов спонтанного деления применялись детекторы нейтронов, которые имеют высокую чувствительность к изотопам, испускающим при делении большое число мгновенных нейтронов. Гримм, Херрманн и Шюсслер /41/, работая с детектором, регистрирующим нейтронные потоки, изучили более ста различных образцов на уровне чувстви-

тельности $T/C = 10^{20}$ лет /при условии, что для сверхтяжелого элемента $\bar{\nu} = 10^{46}$ /. Флеров и др. /39,40,45/, Томпсон и др. /42/ и Стоугтон и др. /43,44/ применяли нейтронные детекторы для регистрации нескольких нейтронов в одном акте деления. Чувствительность этой методики зависит от предположения о величине $\bar{\nu}$. Для излучателей, характеризующихся величиной $\bar{\nu} < 4$, была достигнута чувствительность $T/C = 10^{22}$ лет, при $\bar{\nu} \geq 5$ измеримый предел T/C соответствует 10^{24} лет /39,40,45/. Авторы работ /42-44/, ограничившись поиском спонтанно делящихся излучателей, испускающих большое число мгновенных нейтронов / $\bar{\nu} = 5-10$ /, достигли чувствительности $T/C = 10^{23}$ лет.

Из приведенного обзора видно, что с помощью пропорциональных счетчиков и нейтронных детекторов при поисках сверхтяжелых элементов была достигнута предельно высокая чувствительность. Поэтому целесообразно последовательно рассмотреть результаты этих экспериментов.

2. БОЛЬШИЕ ПРОПОРЦИОНАЛЬНЫЕ СЧЕТЧИКИ

Пропорциональные счетчики /37/ применялись для регистрации редких актов спонтанного деления при изу-

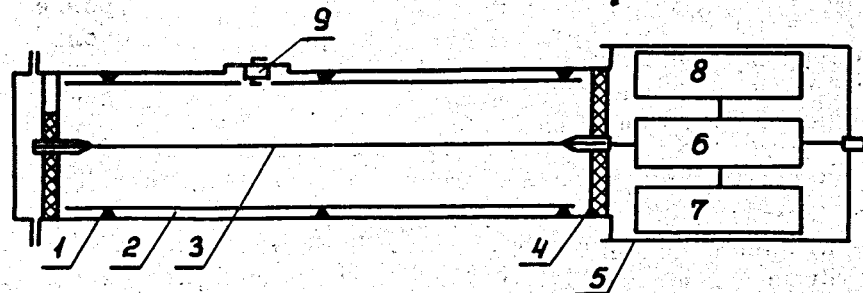


Рис. 1. Схема пропорционального счетчика, 1 - корпус, 2 - полуцилиндрические желоба для нанесения исследуемых образцов, 3 - нить, 4 - изолятор, 5 - медный экран, 6 - усилитель, 7, 8 - батареи питания, 9 - образец ^{235}U .

чении широкого круга образцов. Было изготовлено шесть счетчиков. Их корпуса представляли собой алюминиевые или стальные трубы длиной 2 м и диаметром 26 см /см. рис. 1/. Катодом служили два желоба полуцилиндрической формы. Исследуемые образцы наносились тонким слоем /3,0 - 3,5 мг/см²/ на внутреннюю поверхность желобов, площадь которой равнялась 1,6 м². Анодом служила нихромовая нить диаметром 50 мкм, натянутая по оси счетчика. Счетчики наполнялись метаном до 50 тор и имели широкую область пропорциональности, коэффициент газового усиления при рабочем напряжении 1200 в был равен 300.

Электронная схема, применяемая в данных опытах, была максимально простой. Усилители электрических импульсов имели коэффициент усиления порядка десяти. Импульсы от шести счетчиков регистрировались на самопишущем вольтметре, пять перьев которого фиксировали амплитуду каждого импульса с точностью 20% и номер счетчика. Высокое напряжение нитей счетчиков и питание усилителей обеспечивались сухими элементами, остальная часть схемы питалась от аккумуляторов. Этим достигалась практически полная нечувствительность схемы к электрическим помехам. Уровень фона, обусловленного электрическими помехами, был не выше одного импульса в год.

Для нанесения слоев исследуемый материал измельчался в шаровой мельнице до размеров зерен 0,5 - 1 мкм. Пульпа измельченного образца в смеси спирта и ацетона наносилась распылением на желоба счетчиков. Для связывания слоя в пульпу добавлялся клей БФ-2, который составлял по весу менее 3% от исследуемого материала. В диэлектрические среды для создания проводимости вводился аквадаг /8% по весу/. Калибровка счетчиков проводилась осколками деления урана-235 тепловыми нейтронами. Измеренная по спонтанному делению урана-238 эффективность регистрации осколков деления была равна 60%.

Предельная чувствительность данной методики при поиске сверхтяжелых элементов определялась уровнем фона от спонтанного деления урана, а также фоном от

деления космическими лучами тория, висмута, свинца и других тяжелых элементов, входящих в исследуемые образцы. Большинство образцов, представляющих интерес для поисков сверхтяжелых элементов, имеет примесь урана на уровне 10⁻⁶ грамм на грамм и менее. Принимая во внимание, что период полураспада урана-238 относительно спонтанного деления равен 10¹⁶ лет, можно заключить, что предельно измеримой является концентрация сверхтяжелого элемента, соответствующая T/C = 10²² лет /0,175 делений на 1 грамм образца в год/. Примерно такой же предел чувствительности определяется соотношениями разумной длительности экспериментов: несколько делений в год на образец весом 50 г.

Фон от деления тория космическими лучами на уровне моря приводит к кажущемуся эффекту спонтанного деления тория-232 с T_{каж.} = 1,5 · 10¹⁹ лет. /49/. Ввиду того, что концентрация тория в образцах не превышала 10⁻⁵ грамм на грамм, его вынужденное деление можно было не учитывать.

Более существенный вклад в фон может дать вынужденное деление таких тяжелых металлов, как висмут, свинец, таллий, ртуть, входящих в образцы в больших пропорциях. Поэтому измерения с пропорциональными счетчиками проводились в защищенных помещениях с толщиной перекрытий, эквивалентной 40 см и 200 см бетона. Результаты некоторых контрольных опытов приведены в табл. 1. Как видно, под защитой 40 см бетона обнаруживается кажущийся эффект спонтанного деления висмута /3,1 дел./год.г/ и свинца /1,6 дел./год.г/. Этот эффект обусловлен, очевидно, делением ядер Bi и Pb ядерно-активной компонентой космических лучей, что подтверждается резким уменьшением счета осколков деления под бетонным слоем толщиной 200 см. Суммируя результаты второй и четвертой строк табл. 1, можно заключить, что под слоем защиты 200 см бетона кажущийся эффект спонтанного деления свинца практически не проявляется /≤ 0,2 дел./год.г/. Изотоп ²⁰⁸Pb /см. табл. 1/ испытывает деление космическими частицами с меньшей вероятностью по сравнению с естественной смесью изотопов свинца. Поэтому измерения с этим

Таблица I

Образец	Вес (г)	Содержание Pb, Bi U	40 см.бетона			200 см.бетона		
			I	2	3	I	2	3
гидроокись висмута	50	80 (Bi) 10^{-5}	24	117	3,1±I,4	0	48	<0,3
свинец ^{x)}	50	83 (Pb) $4 \cdot 10^6$	65	598	1,6±0,4	0	56	<0,2
208	41	87 (Pb)	-	5	122	0,7±0,5	-	-
свинцовое стекло	55	40 (Pb) $2 \cdot 10^5$	15	108	3,8±2,0	I	93	<0,3

I - число зарегистрированных импульсов.

2. - время измерения (сутки).

3 - число делений в год на I г свинца или висмута; указаны ошибки, соответствующие интервалу 95% доверительности; фон от спонтанного деления урана вычтен.

x) фракция свинца, выделенная из свинцово-цинковой руды гидрометаллургическим способом.

изотопом не могут служить для оценки уровня фона, как это делалось в работе /37/.

Приведенные результаты показывают, что уровень фона позволял с помощью пропорциональных счетчиков достигнуть чувствительности обнаружения сверхтяжелых элементов в образцах, соответствующей $T/C = 10^{22}$ лет. При таком предельном содержании спонтанно делящегося элемента должен был регистрироваться на шести счетчиках в среднем один импульс в 10-15 суток. Возвращаясь к образцам, представленным в табл.1, можно сказать, что для них установлен предел содержания сверхтяжелого элемента на уровне $T/C = 4 \cdot 10^{21}$ лет.

3. НЕЙТРОННЫЕ ДЕТЕКТОРЫ ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ РЕДКИХ АКТОВ МНОЖЕСТВЕННОГО ИСПУСКАНИЯ НЕЙТРОНОВ

Помимо больших пропорциональных счетчиков, в экспериментах по поиску сверхтяжелых элементов применялись нейтронные детекторы, позволяющие регистрировать акты множественного испускания нейтронов из образцов большого объема. Детектор /см. рис. 2/ представлял собой цилиндрический объем, заполненный парафином. В центре парафинового блока имела цилиндрическая полость /диаметром 16 см/, в которую помещался контейнер с исследуемым веществом. Рабочий объем контейнера, заполняемый исследуемым образцом, равнялся 10 литрам. Вокруг контейнера в парафине находилось 14 пропорциональных счетчиков с $^3\text{He}^*$. Счетчики имели длину 50 см и диаметр 32 мм. Давление газа - 7 атмосфер. Высокое напряжение /1700 в/ на все счетчики подавалось

* Авторы благодарят В.Г.Чайковского за оказанную помощь в изготовлении специальных счетчиков.

от одного источника питания. Для уменьшения вероятности пробоев по поверхности изоляторов счетчики были снабжены охранными кольцами. Для уменьшения фона от космических лучей над нейтронным детектором помещалась система из гейгеровских счетчиков, импульсы от которых блокировали электронную схему детектора.

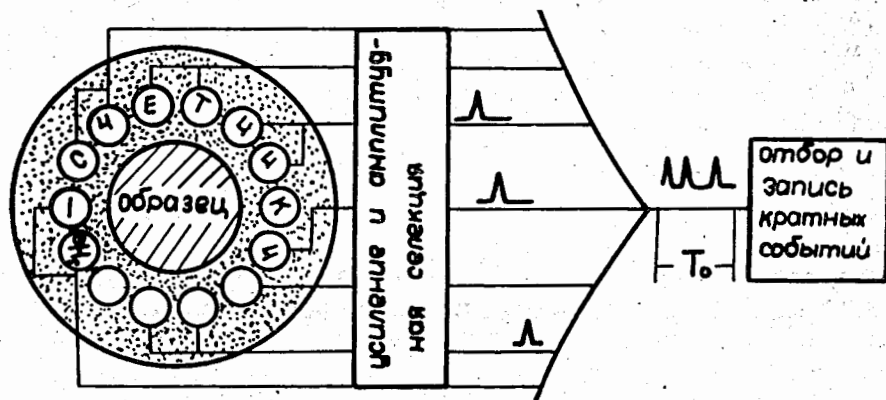


Рис. 2. Схема, иллюстрирующая принцип работы нейтронного детектора кратных событий /пояснения даны в тексте/.

Электронная схема обеспечивала регистрацию нескольких нейтронов, возникающих в одном акте распада атомного ядра. Принцип ее работы отражен на схеме рис. 2. Временной интервал (T_0), занимаемый группой импульсов от этих нейтронов, зависит от среднего времени жизни нейтронов в системе образец-замедлитель-счетчики. По выходному сигналу все 14 счетчиков были объединены в семь пар, импульсы от которых поступали на отдельные усилители и далее на схемы отбора по амплитуде. После отбора по амплитуде импульсы со всех трактов объединялись и подавались на вход регистрирующей схемы. Если на вход этой схемы поступал импульс, включалось устройство, которое регистрировало все импульсы, поступившие от нейтронных счетчиков в течение интервала времени T_0 после прихода старто-

вого импульса. Таким образом, любой импульс от счетчиков принимался электронной схемой как стартовый, если до его прихода в промежутке времени T_0 другие импульсы не поступали. Разрешающее время для пары импульсов равнялось 2 мксек. Если два импульса были разделены меньшим временным интервалом, схема воспринимала их как один импульс. Перья самопишущего вольтметра, включенного на выходе электронной схемы, фиксировали для каждого события его кратность /число импульсов, зарегистрированных за интервал времени T_0 /, а также номера счетчиков, с которых поступили импульсы в данном событии. Кроме того, отдельный канал отмечал одиночные импульсы нейтронов.

Калибровка детекторов осуществлялась с помощью мгновенных нейтронов спонтанного деления плутония-242 и урана. Для подбора величины интервала времени T_0 проводился счет кратных /двойных, тройных и т.д./ событий от нейтронов, генерируемых в свинце космическими лучами. На рис. 3 показана зависимость счета кратных событий от T_0 для детектора со свинцом /100 кг/ в рабочем объеме. Опыт выполнялся в помещении, которое не было защищено от космических лучей. Как видно из рис. 3, среднее время жизни нейтронов оказалось

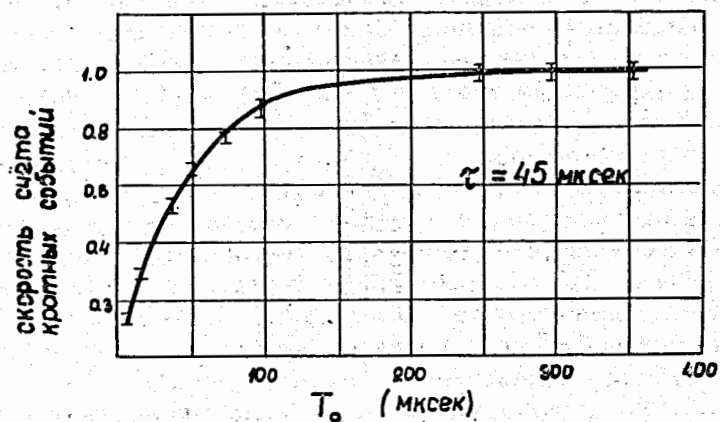


Рис. 3. Зависимость скорости счета кратных событий /в относительных единицах/ от величины интервала времени T_0 /пояснения даны в тексте/.

равным 45 мксек. Все опыты в дальнейшем проводились с постоянным интервалом $T_0 = 150$ мксек.

Эффективность (ϵ) регистрации одиночных нейтронов определялась при калибровке с образцом плутония-242 по отношению числа зарегистрированных двойных событий (N_2) к числу тройных событий (N_3):

$$\frac{N_2}{N_3} = R \frac{\sum_{\nu \geq 2} P_\nu \epsilon^2 (1-\epsilon)^{\nu-2} \frac{\nu!}{2!(\nu-2)!}}{\sum_{\nu \geq 3} P_\nu \epsilon^3 (1-\epsilon)^{\nu-3} \frac{\nu!}{3!(\nu-3)!}}$$

Здесь P_ν - вероятность испускания ν нейтронов в одном акте деления ^{242}Pu , R - поправочный множитель, учитывающий просчеты двойных и тройных событий из-за конечного разрешающего времени регистрирующей схемы. Счет кратных событий от плутония-242 проводился в процессе работы периодически для контроля стабильности работы установки. Проверка точности определения величины ϵ была осуществлена в отдельном опыте, в котором регистрировались нейтроны деления уранового препарата /1 з/, помещенного в ионизационную камеру. Стартовыми импульсами в этом случае служили импульсы осколков деления от камеры. Определенная таким образом величина ϵ оказалась равной $26,5 \pm 2,3\%$ для источника, помещенного в центральной части контейнера. Проверка с помощью калиброванного $\text{Pu} - \text{Be}$ источника показала, что в пределах полученной точности эффективность не зависит от средней энергии нейтронов. На рис. 4 показана зависимость ϵ от положения источника вдоль оси рабочего объема детектора.

Чувствительность экспериментов с нейтронным детектором определяется, в первую очередь, уровнем фона, который обусловлен космическими лучами. Ядерно-активную компоненту космических лучей удается подавить, применив сравнительно небольшую защиту /10 мвэ * / . Однако фон нейтронов от мюонной компоненты на небольших глубинах оказывается существенным /47, 48 / . В табл. 2 приведены некоторые данные о генерации нейтронов мюонами на различных глубинах.

* Метры водного эквивалента.

Таблица 2

Глубина (метры водного эквивалента)	Средняя энергия мюонов (Гэв)	Интенсивность вертикальной компоненты мюонов ($\text{см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$ стерад $^{-1}$)	Среднее число нейтронов, испускаемых ядрами свинца при столкновении с мюоном	Полное число нейтронов, генерируемых в свинцовом образце весом 50 кг за 1 сек
10	6	$1,3 \cdot 10^{-2}$	11	$4,9 \cdot 10^{-1}$
40	14	$1,7 \cdot 10^{-3}$	15	$6 \cdot 10^{-2}$
320	65	$2 \cdot 10^{-5}$	44	$2 \cdot 10^{-3}$
1100	160	$9 \cdot 10^{-7}$	>70	$1,1 \cdot 10^{-4}$

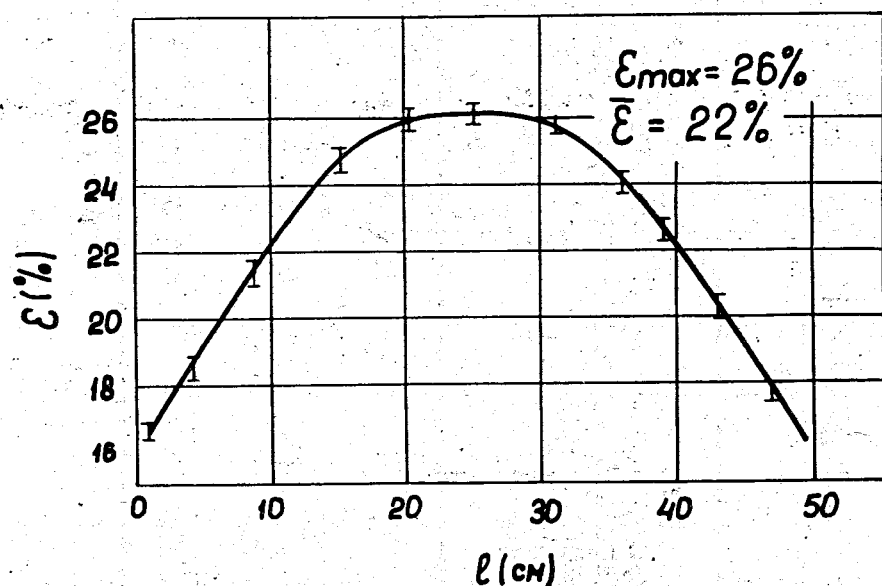


Рис. 4. Зависимость вероятности регистрации одиночных нейтронов (ϵ) от глубины погружения (l) точечного источника в рабочий объем нейтронного детектора.

Данные о фоновых измерениях, проведенных на этих глубинах с применением защитной системы из счетчиков Гейгера, представлены в табл. 3. Из этой таблицы видно, что до глубины 320 мвэ основным источником фона являлись ядерные взаимодействия мюонов с веществом, содержащимся в чувствительном объеме. На глубине 1100 мвэ эта компонента фона, при использовании системы антисовпадений, по-видимому, незначительна. Зарегистрированные двойные и тройные события можно объяснить спонтанным делением примеси урана в образцах. Материал самого детектора и окружающие стены давали малый вклад в фон. На глубине 320 мвэ и 1100 мвэ этот вклад, как видно, практически равен нулю. Счет одиночных импульсов на глубине 1100 мвэ составлял с пустым контейнером для образца 6-10 импульсов в час.

Таблица 3

Глубина, мвэ	Образец	Вес, кг	Время измерения (часы)	Число зарегистрированных событий с кратностью		
				2	3	4
10 ^x	свинец	50	23	76	5	3
	вольфрам	26	30	54	2	0
	железо	30	10	10	0	0
	алюминий	11	29	6	0	0
	фон	-	33	3	1	0
40 ^x	свинец	50	29	13	2	2
	вольфрам	26	20	6	1	0
	железо	30	34	8	0	0
	алюминий	11	152	21	0	0
	фон	-	34	4	0	0
320 ^x	ртуть	35	283	10	3	1
	вольфрам	26	520	24	0	2
	алюминий	11	224	0	1	0
1100	свинец	99	351	0	0	0
	ртуть	35	281	1	1	0
	вольфрам	69	1118	10	4	0
	фон	-	3513	0	0	0

x) Измерения на этих глубинах проводились с нейтронным детектором, который описан в [39]. Эффективность регистрации одиночных нейтронов в центре чувствительного объема равнялась для этого детектора 16%.

Все рабочие измерения проводились в соляной шахте на глубине 1100 мвэ.

При использовании описанного нейтронного детектора для поисков сверхтяжелых элементов целесообразно предварительно оценить его чувствительность. Чувствительность детектора существенно зависит от среднего числа мгновенных нейтронов ($\bar{\nu}$), испускаемых при делении. Оценки, основанные на экстраполяции свойств известных спонтанно делящихся изотопов, показывают, что для изотопов с $Z = 110-114$ $\bar{\nu}$ должно быть около десяти ⁴⁶. Несмотря на это, вряд ли следует ограничить эксперименты поиском спонтанно делящихся излучателей только с большим $\bar{\nu}$.

На рис. 5 показаны кривые зависимости от $\bar{\nu}$ вероятности регистрации событий различной кратности, полученные расчетным путем для детектора с эффективностью к одиночным нейтронам $\epsilon = 26\%$. Видно, что вероятность регистрации спонтанного деления урана не-

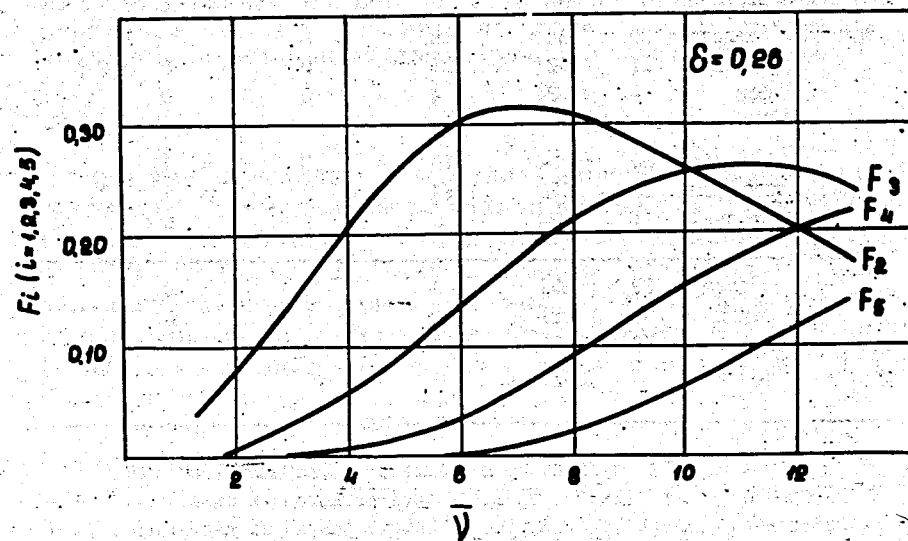


Рис. 5. Зависимость вероятности (F_i) регистрации событий различной кратности (i) от величины $\bar{\nu}$ - среднего числа мгновенных нейтронов, испускаемых при делении.

велика. Определенная в специальном опыте, в котором рабочий объем детектора был заполнен рудой с известным содержанием урана, она оказалась равной 6,5% /вероятность регистрации событий с кратностью 2 составляла 6%, вероятность событий более высокой кратности - 0,5%/ . С ростом $\bar{\nu}$ эффективность регистрации кратных событий резко возрастает и достигает $\approx 70\%$ при $\bar{\nu} = 10$. Принимая во внимание события с кратностью более двух, можно значительно уменьшить влияние фона от деления примеси урана в образцах.

На рис. 6 показана зависимость от $\bar{\nu}$ предельной величины T/C , которая может быть измерена с помощью описанного детектора. Расчет этой зависимости

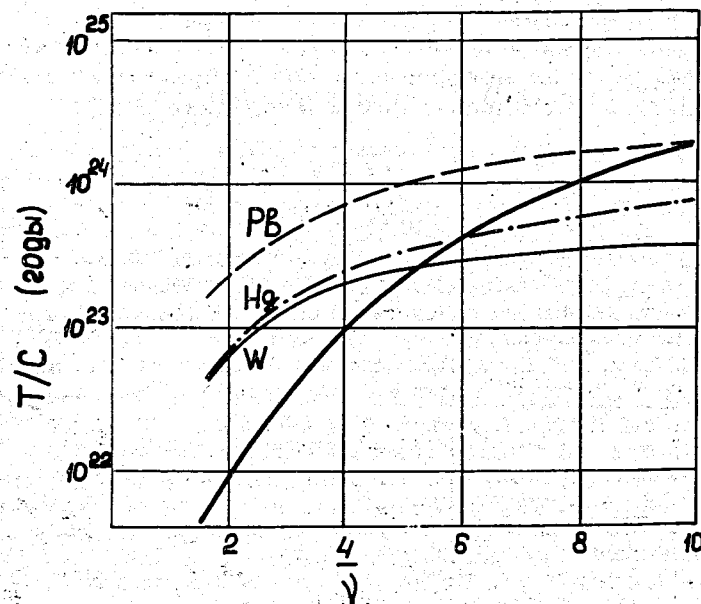


Рис. 6. Зависимость предельной измеримой величины T/C от $\bar{\nu}$, рассчитанная для стандартного образца /вес 25 кг, 20% тяжелого металла, $10^{-4}\%$ урана/, - жирная линия. Остальные три линии на рисунке показывают пределы содержания сверхтяжелых элементов в образцах свинца, ртути и вольфрама, полученные при измерениях на глубине 1100 мвэ.

был проведен для стандартного образца руды, содержащего по весу 20% тяжелого металла и 10^{-4} % урана. Вес образца - 25 кг. При $\bar{\nu} < 4$ предельная чувствительность определяется практически уровнем фона от деления урана. Для излучателей с $\bar{\nu} \geq 4$ предел чувствительности диктуется в первую очередь соображениями разумной длительности опыта, при которой может быть получен статистически достоверный результат.

На основании данных, приведенных в табл. 3, могут быть указаны пределы содержания сверхтяжелых элементов в образцах свинца, ртути и вольфрама, измерения с которыми были проведены на глубине 1100 мвз. Эти пределы в единицах T/C показаны на рис. 6.

Авторы благодарят Е.Д.Воробьева, В.Г.Субботина, Б.В.Фефилова, М.С.Бирулева, А.В.Михушкина, Л.А.Рубинскую, В.Г.Барабанова и А.Г.Пилькова за участие в разработке аппаратуры. Большое значение при выборе типа нейтронного детектора имела помощь, оказанная Г.Н.Смиренкиным и Л.И.Прохоровой.

Литература

1. G.N.Flerov. In "The Future of Nuclear Structure Studies". Proc. of the IAEA Panel, Dubna 1-3 July 1968; IAEA, Vienna, 1969, pp. 11-24.
2. M.Brack, J.Damgaard, A.S.Jensen, H.C.Pauli, V.M.Strutinsky and C.Y.Wong. Rev.Mod.Phys., 44, 320 (1972).
3. S.G.Nilsson, C.F.Tsang, A.Sobiczewski, Z.Szimanski, S.Wycech, C.Gustafson, J.L.Lamm, P.Möller and B.Nilsson. Nucl.Phys., A131, 1 (1969).
4. E.O.Fiset, J.R.Nix. Nucl.Phys., A193, 647 (1972).
5. Ф.Пауэл. Вестник АН СССР, №8 /1968/; P.H.Fowler, V.M.Clapham, V.G.Cowen, J.M.Kidd and R.T.Moses. Proc. Roy.Soc., London, A318, 1 (1970).
6. P.V.Price, P.H.Fowler, J.M.Kidd, E.J.Kobetich, R.L.Fleischer and G.E.Nichols. Phys.Rev., D3, 815 (1971).
7. О.Отгонсурэн, В.П.Перельгин. Препринт ОИЯИ, P7-7406, Дубна, 1973.
8. S.G.Nilsson, S.G.Thompson and C.F.Tsang. Phys.Lett., 28B, 458 (1969).
9. J.J.Weselowski, W.R.J.Jewell and F.Guy. Phys.Lett., 28B, 544 (1969).
10. A.Wyittenbach, Z.Naturforschung 25A, 307 (1970).
11. R.Buchta, W.Forsling, S.O.Hilding and N.Johansson. Annual Report 1970, Research Institute for Physics, Stockholm.
12. Ю.А.Батусов и др. Препринт ОИЯИ, P1-6551, Дубна, 1972.

13. M.Sowinski, C.Stephan, T.Czyzewski and J.Tys. Международная конференция по физике тяжелых ионов. Дубна, 11-17 февраля 1971, стр. 79.
14. J.Schintelmeister. Sitz. Ber. Österr. Akad. Wiss., 114, 475 (1935).
15. В.В.Чердынцев. Изв. АН СССР, сер. физ., 34, 2281 /1970/.
16. R.D.Cherry, K.A.Richardson and J.A.S.Adams. Nature, 202, 639 (1964).
17. H.Meier, W.Albrecht, D.Bösche, W.Hecker, P.Menge, A.Ruckdeschel, E.Ungler, G.Zeitler, E.Zimmerhackl. Z.Naturforschung, 25A, 79 (1970).
18. В.Куш, В.И.Чепизин, Г.М.Тер-Акопьян, С.Д.Богданов. АЭ, 31, 159 /1971/.
19. Р.А.Кузнецов, Р.П.Богданов, см. /13/, стр. 90.
20. J.Schintelmeister, H.Beulich, Ch.Heiser, F.Herrmann, D.Netzband, R.Ross and H.Schobbert. See ref. /13/, page 106.
21. К.А.Петржак, М.И.Якунин, Г.М.Тер-Акопьян. АЭ, 32, 179 /1972/.
22. Г.Н.Флеров, В.П.Перельгин. АЭ, 26, 520 /1969/.
23. Э.Цесьляк. Препринт ОИЯИ, P15-4738, Дубна, 1969.
24. Г.Н.Флеров, В.П.Перельгин, О.Отгонсурэн. АЭ, 33, 979 /1972/.
25. О.Отгонсурэн, В.П.Перельгин, Г.Н.Флеров. ДАН, 189, 1200 /1969/.
26. О.Отгонсурэн, В.П.Перельгин, С.П.Третьякова, Ю.А.Виноградов. АЭ, 32, 344 /1972/.
27. P.V.Price, R.L.Fleischer and R.T.Woods. Phys.Rev., C1, 1819 (1970).
28. P.V.Price and R.L.Fleischer. Phys.Lett., 30B, 246 (1969).
29. N.Bhandari, S.G.Bhat, G.Rajagopalan, A.S.Tamhane and V.S.Venkatavaradan. Nature, 230, 219 (1971); Nature, 234, 540 (1971).
30. U.Haack. Naturwissenschaften, 60, 65 (1973).
31. О.Отгонсурэн, В.П.Перельгин. См. /13/, стр. 85.
32. E.Anders and D.Heymann. Science, 164, 821 (1969).
33. М.Даковский. Изв. АН СССР, сер. физ., 33, 1256 /1969/.
34. Ю.А.Шуколюков, Э.К.Герлинг, Г.Ш.Ашкинадзе. См. /13/, стр. 97.
35. O.K.Manuel, E.W.Hennecke, D.D.Sabu. Nature Physical Science, 240, 99 (1972).
36. P.M.Jeffery. Nature, 233, 260 (1971).
37. Г.Н.Флеров, Н.К.Скобелев, Г.М.Тер-Акопьян, В.Г.Субботин, Б.А.Гвоздев, М.П.Иванов. Препринт ОИЯИ, Д6-4554, Дубна, 1969.
38. H.W.Reist, V.Hahn and H.R. von Gunten. See ref. /13/, page 73.
39. Г.М.Тер-Акопьян, М.П.Иванов, А.Г.Попеко, В.Г.Субботин, Б.В.Фефилов, Е.Д.Воробьев. Препринт ОИЯИ, P13-5394, Дубна, 1970.
40. Г.Н.Флеров, Г.М.Тер-Акопьян, Н.К.Скобелев,

- М.П.Иванов, А.Г.Попеко, В.Г.Субботин, Б.В.Фефилов,
Е.Д.Воробьев. См. /13/, стр. 61.
41. W.Grimm, G.Herrmann and H.-D.Schussler. *Phys.Rev.Lett.*, 26, 1040, 1408 (1971).
 42. E.Cheifetz, R.C.Jared, E.K.Giusti and S.G.Thompson. *Phys.Rev.*, C6, 1348 (1972).
 43. R.L.Macklin, F.M.Glass, J.Halperin, R.T. Roseberry, H.W.Schmitt, R.W.Stoughton and M.Tobias. *Nucl. Instr. & Meth.*, 102, 181 (1972).
 44. R.W.Stoughton, J.Halperin, J.S.Drury, R.V.Gentry, R.M.Milton, J.H.McCarthy and R.L.Macklin. Oak Ridge Nat. Lab., Report ORNL-4791, 34, 1972.
 45. G.N.Flerov, G.M.Ter-Akopian, A.G.Popeko, N.K.Skobelev, V.P.Pereygin and O.Otgonsuren. *European Conf. on Nuclear Physics, Aix-en-Provence*, v. ii, p. 88, 1972.
 46. J.Nix. *Phys.Lett.*, 30B, 1 (1969).
 47. G.Cocconi and V.Cocconi-Tongiorgi. *Phys.Rev.*, 82, 355 (1951).
 48. O.G.Ryajskaya, G.T.Zatsepin. *Proc. of the 9th Intern. Conf. on Cosmic Rays, London*, v. 2, p. 987, 1965.
 49. А.В.Подгурская, В.И.Калашникова, Г.А.Столяров, Е.Д.Воробьев, Г.Н.Флеров. *ЖЭТФ*, 28, 503 /1955/.
 50. F.H.Geisler, P.R.Philips and R.M.Walker. *Laboratory of Space Physics, Washington University Report SPP-48*, 1973.

Рукопись поступила в издательский отдел
7 декабря 1973 года.

Флеров Г.Н., Тер-Акопьян Г.М., Скобелев Н.К.,
Попеко А.Г., Иванов М.П.

P6 - 7588

Эксперименты по поиску в природе спонтанно делящихся
нуклидов сверхтяжелых элементов. 1

В результате анализа различных методов, применяемых для поисков сверхтяжелых элементов в природе, показано, что метод поисков, основанный на регистрации редких событий спонтанного деления в образцах, является одним из наиболее чувствительных и универсальных. Описываются большие пропорциональные счетчики осколков деления и нейтронные детекторы актов множественного испускания нейтронов. Установлены верхние пределы содержания сверхтяжелых элементов в образцах гидроокси-си висмута ($2,5 \cdot 10^{-13}$ грамма на грамм), свинца ($4 \cdot 10^{-15} - 5 \cdot 10^{-16}$ грамма на грамм), ртути ($1,4 \cdot 10^{-14} - 1,4 \cdot 10^{-15}$ грамма на грамм) и вольфрама ($1,4 \cdot 10^{-14} - 2,5 \cdot 10^{-15}$ грамма на грамм) при условии, что период полураспада искомого элемента равен 10^9 лет.

Препринт Объединенного института ядерных исследований.
Дубна, 1973

Flerov G.N., Ter-Akopian G.M., Skobelev N.K.,
Popeko A.G., Ivanov M.P.

P6 - 7588

Experiments on Search for Spontaneously
Fissioning Nucleides of Superheavy
Elements in Nature. 1

See the Summary on the reverse side of the title-page.

Preprint. Joint Institute for Nuclear Research.
Dubna, 1973