

СЗЧ.2Г

ФР-716

2678/2-74

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



Р6 - 7856

Г.Н.Флеров, В.Я.Выропаев, Л.С.Гецкин, А.Г.Попеко,
Н.К.Скобелев, Г.М.Тер-Акопьян, П.П.Цыб

ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО ПОИСКУ В ПРИРОДЕ
СПОНТАННО ДЕЛЯЩИХСЯ НУКЛИДОВ
СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

III. ПОИСК СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
В ЖЕЛЕЗО-МАРГАНЦЕВЫХ КОНКРЕЦИЯХ

1974

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

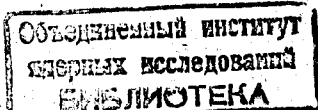
P6 - 7856

Г.Н.Флеров, В.Я.Выропаев, Л.С.Гецкин, А.Г.Попеко,
Н.К.Скобелев, Г.М.Тер-Акопьян, П.П.Цыб

ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО ПОИСКУ В ПРИРОДЕ
СПОНТАННО ДЕЛЯЩИХСЯ НУКЛИДОВ
СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

III. ПОИСК СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
В ЖЕЛЕЗО-МАРГАНЦЕВЫХ КОНКРЕЦИЯХ

Направлено в ЯФ



Флеров Г.Н., Выропаев В.Я., Гецкий Л.С., Попеко А.Г.,
Скобелев Н.К., Тер-Акопян Г.М., Цыб П.П. Р6 - 7856

Эксперименты по поиску в природе спонтанно делящихся нуклидов сверхтяжелых элементов. III. Поиск сверхтяжелых элементов в железо-марганцевых конкрециях

Проведены поиски сверхтяжелых элементов в железо-марганцевых конкрециях. Исследованы также продукты возгона из конкреций и продукты химического обогащения тяжелыми элементами. Для изученных продуктов получены предельные значения Т/С для тяжелых аналогов ртути, таллия, свинца и висмута.

Препринт Объединенного института ядерных исследований.
Дубна, 1974

Flerov G.N., Vyropayev V.Ya., Getskin L.S.,
Popeko A.G., Skobelev N.K.,
Ter-Akopian G.M., Tsyb P.P. Р6 - 7856

Experiments on Search in Nature for
Spontaneously Fissioning Nuclides
of Superheavy Elements. III. Search
for Superheavy Elements in Iron-Manganese
Nodules

Searches were made for superheavy elements in the iron-manganese nodules. The products sublimated from the nodules and the products chemically enriched by the heavy elements were investigated. For the studied products the limiting values were obtained for the half-life-to-concentration ratio for heavy analog of Hg, Tl, Pb and Bi.

Preprint. Joint Institute for Nuclear Research.
Dubna, 1974

Настоящая работа является частью исследований, направленных на поиски в природе сверхтяжелых элементов / $Z = 110-115$ /. В двух предыдущих статьях была описана методика ^{/1/} и результаты экспериментов по поиску экаспинца - элемента с порядковым номером 114 ^{/2/}. Глубоководные железо-марганцевые конкреции, обладающие замечательной способностью концентрировать из океанской воды тяжелые элементы / Hg, Tl, Pb, Bi /, представляют значительный интерес для поисков сверхтяжелых элементов *. Можно предположить, что механизм образования железо-марганцевых конкреций, детали которого пока до конца не выяснены ^{/3/}, приводит также к их обогащению тяжелыми аналогами указанных металлов / $Z = 112-115$ /.

Из всех местонахождений железо-марганцевых конкреций в первую очередь следует обратить внимание на обширные районы дна Тихого океана, для которых характерна минимальная скорость накопления осадков. Осадки здесь относительно свободны от терригенных продуктов, представляющих в данном случае балластное вещество. Скорость роста конкреций в этих районах достигает 0,1 - 1 мкм в год, средний возраст колеблется от одного до десяти миллионов лет. Коэффициенты обогащения ртути, таллия, свинца и висмута достигают величин $10^5 - 10^7$ ^{/3/}.

Среди различных источников тяжелых металлов в водах Тихого океана отметим подводный вулканизм

* Внимание авторов на перспективность глубоководных железо-марганцевых конкреций для поисков сверхтяжелых элементов было обращено академиком А.П.Виноградовым.

и подводные гидротермы. Естественно предположить, что вещество, поступающее в океан из этих источников, обогащено летучими компонентами, включая гипотетические элементы с $Z = 112-115$.

Глубоководные железо-марганцевые конкреции представляют интерес в связи с поисками сверхтяжелых элементов также и по другой причине. Благодаря исключительно низкой скорости роста, они наряду с вмещающими седиментами /красными глинами/ содержат значительную компоненту вещества, поступающего на земную поверхность из Космоса. На преимущественно космическое происхождение в конкрециях, например, таких металлов, как иридий и золото, указывают авторы работы ^{/4/}. Поэтому железо-марганцевые конкреции представляют в перспективе наиболее подходящие объекты для поисков атомных ядер сверхтяжелых элементов, попадающих на Землю с космическими лучами.

На возможное присутствие в первичном космическом излучении слабого потока таких ядер указывали данные работы Фаулера ^{/5/}. Результаты последующих экспериментов ^{/6/}, в которых была достигнута более высокая чувствительность, оказались, к сожалению, отрицательными. Основываясь на этих результатах, можно сказать, что на 1 квадратный метр земной поверхности из Космоса поступает не более 1 атома сверхтяжелого элемента в год. Отсюда следует, что верхний предел концентрации сверхтяжелых элементов космического происхождения в железо-марганцевых конкрециях равен $5 \cdot 10^{-21}$ грамма на грамм.

Поиск спонтанно делящихся сверхтяжелых элементов в железо-марганцевых конкрециях проводился рядом авторов. О.Отгонсурен, В.П.Перелыгин и Г.Н.Флеров ^{/7/} исследовали треки осколков спонтанного деления на поверхности кристаллов полевого шпата из конкреций. Был обнаружен значительный избыток числа треков по сравнению с ожидаемым количеством от спонтанного деления урана, содержащегося в конкрециях. Однако обнаруженный избыток может быть объяснен рядом причин, в частности, миграцией урана в процессе роста конкреций ^{/7/}.

Чейфец и др. ^{/8/} изучали активность спонтанного деления в атлантических конкрециях с помощью детектора множественных нейтронов в предположении, что среднее число ($\bar{\nu}$) мгновенных нейтронов спонтанного деления близко к десяти. Эти авторы получили предел концентрации (С) сверхтяжелого элемента с периодом полураспада (Т) на уровне $T/C \geq 9 \cdot 10^{22}$ лет.

Аналогичный результат был получен Стоутоном и др. ^{/9/} при изучении железо-марганцевых конкреций со дна Тихого океана.

Для поисков сверхтяжелых элементов в железо-марганцевых конкрециях нами была применена аппаратура для регистрации редких актов спонтанного деления, описанная подробно ранее ^{/1/}. Эта аппаратура использовалась в сочетании с некоторыми методами обогащения. Активность спонтанного деления измерялась с помощью пропорциональных счетчиков осколков и детекторов множественного испускания нейтронов. Пропорциональные счетчики в помещении, защищенном слоем бетона толщиной 2 м, позволяли достигнуть при поисках сверхтяжелых элементов чувствительности на уровне $T/C \approx 10^{22}$ лет.

Нейтронные детекторы с ^3He -счетчиками регистрировали события, в которых за определенный короткий промежуток времени /150 мксек/ поступало два или более электрических импульсов от нейтронов. Для защиты от космического излучения детекторы были установлены в соляной шахте на глубине 1100 м водного эквивалента. Их чувствительность соответствовала пределу $T/C = 2 \cdot 10^{24}$ лет при $\bar{\nu} \geq 4$. При $\bar{\nu} < 4$ измеримая величина T/C была несколько ниже и в известной степени зависела от концентрации примеси урана в исследуемых образцах. При концентрации урана в образце на уровне 10^{-6} г/г или несколько выше измеримый предел T/C соответствовал 10^{22} лет для $\bar{\nu} = 2$ и возрастал до 10^{24} лет при $\bar{\nu} = 4$.

С целью получения материала для исследования во время 48 рейса научно-исследовательского судна АН СССР "Витязь" в 1970 году со дна Тихого океана в районе Новозеландской банки было поднято около 9 тонн

Среднее содержание некоторых тяжелых элементов в образцах железомарганцевых конкреций

Содержание элементов (г/г)		Источник и примечания				
Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Th	U
$6 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-6}$	-	$5 \cdot 10^{-6}$
$< 2 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-6}$	-	-	-	$5 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-6}$
$2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^{-5}$	$9 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-6}$

Настоящая работа, химико-аналитический и активационный методы. Данные Я. Франа и др. х)

Среднее для Тихого океана, см. Дж. Меро /3/

х) Анализ выполнен инструментальным активационным методом и любезно предоставлен авторам Я. Франом, М. Вобецким и Я. Бауэрром. (Кафедра минералогии VŠCHT (Прага) и Институт ядерных исследований в Ржеже).

железо-марганцевых конкреций^{/10/}. В табл. 1 приведены данные относительно среднего содержания некоторых тяжелых металлов в исследованных пробах.

Измерение активности спонтанного деления конкреций с помощью пропорциональных счетчиков позволило установить верхний предел $T/C = 1,4 \cdot 10^{21}$ лет, который определялся относительно высоким содержанием урана в образцах.

Результаты измерений естественной пробы конкреций на детекторе нейтронов представлены в табл. 2. Из-за относительно высокой концентрации урана $\approx 5 \cdot 10^{-6}$ г/г чувствительность экспериментов с первой 9-килограммовой пробой /см. первую строку табл. 2/ была несколько снижена. Для повышения чувствительности было проведено извлечение урана из конкреций экстракционным методом. В результате содержание урана было уменьшено в 2,5 раза. Данные этих измерений приведены во второй строке табл. 2. В последней строке табл. 2 приведены результаты измерений фона установки /образец в чувствительном объеме детектора отсутствовал/.

С целью извлечения тяжелых элементов из железомарганцевых конкреций применялась высокотемпературная возгонка, а также методы осадительной химии. Применение возгонки было основано на предположении, что такие металлы, как ртуть, таллий, свинец и висмут находятся в конкрециях в виде окислов. При температуре выше 1000°C эти металлы и их окислы проявляют достаточно высокую летучесть. Поэтому, проводя высокотемпературную возгонку в вакууме или восстановительную плавку в токе водорода, можно рассчитывать на обогащение возгонов указанными элементами.

Для проведения возгонки пробы конкреций весом по 3 кг измельчались и помещались в вакуумную печь. Предварительно из них отгонялась вода и другие легколетучие продукты. С этой целью конкреции выдерживались в печи при температуре 500°C в течение шести часов. Затем температура поднималась до 1300°C , и пробы выдерживались в вакууме или в токе водорода в течение

Таблица 2

Вес образца урана (кг)	Содержание урана (%)	Время измерения (сутки)	Число событий с указанной кратностью х)				T/C (годы) xx)
			2	3	4	5	
$5 \cdot 10^{-4}$	8,5	16	0	0	$\geq 2 \cdot 10^{23}$	$\geq 8 \cdot 10^{22}$	$\approx 5 \cdot 10^{21}$
$2 \cdot 10^{-4}$	34,7	22	4	0	$\geq 6 \cdot 10^{23}$	$\geq 3 \cdot 10^{23}$	$\approx 2 \cdot 10^{22}$
-	163	0	0	0	-	-	-

х) Под кратностью событий подразумевается число импульсов от нейтронов, зарегистрированных в акте спонтанного деления.

xx) Фон от деления урана вычтен. Фон кратных событий, которые могли возникнуть за счет взаимодействия космических мюонов с веществом конкреций, отсутствовал (см./1/).

30-50 час. Продукты возгонки конденсировались в восьми ступенях, температура поверхности которых постепенно уменьшалась от 1000°C до 150°C . Выход возгоняющихся тяжелых элементов контролировался путем введения в пробу радиоактивного изотопа ^{202}Tl . Более 90% таллия конденсировалось в ступенях с температурой около 300°C .

Результаты измерений на пропорциональных счетчиках активности спонтанного деления полученных продуктов приведены в табл. 3.

После проведения химических опытов на пропорциональных счетчиках измерялась активность продуктов, среди которых можно отметить следующие.

1. Осадок получен при внутреннем электролизе на металлическом цинке из растворов от разложения двух проб конкреций по 5 кг соляной, серной и щавелевой кислотами с последующим выщелачиванием свинца хлоридами натрия и кальция. В этих операциях из 10 кг конкреций было получено 60 г осадка, содержащего 10% свинца, $3 \cdot 10^{-2}\%$ ртути, по $10^{-2}\%$ таллия и индия, по 0,1% олова и кадмия. В осадке произошло обогащение урана до $4 \cdot 10^{-3}\%$.

2. Продукт извлечен в процессе более сложной химической процедуры по сравнению с описанной в п.1. Из 30 кг конкреций было получено 25 г сульфата свинца. В этом продукте содержалось 68,3% свинца, $8 \cdot 10^{-2}\%$ висмута, $3 \cdot 10^{-2}\%$ сурьмы, $10^{-3}\%$ таллия, $10^{-4}\%$ олова; ртуть и индий не были обнаружены. Осадок содержал $3 \cdot 10^{-5}\%$ урана.

3. В процессе выделения свинца из 30 кг конкреций был также получен продукт весом 35 г, в котором содержались в основном следующие элементы: медь - 92%, таллий - 0,5%, висмут - 0,42%, сурьма - $\approx 1\%$, ртуть - $10^{-2}\%$, мышьяк - 0,3-1%, свинец - $8 \cdot 10^{-2}\%$, индий - $10^{-4}\%$, кадмий и олово - по 0,1%. Содержание урана в образце - $5 \cdot 10^{-5}\%$.

4. Сухой остаток /116 г/, полученный после растворения 0,5 кг конкреций в серной кислоте с последующим добавлением щавелевой кислоты. Содержание свинца в осадке было на уровне 0,4%. Другие тяжелые элементы в этом образце не были обнаружены.

Таблица 3

Образец	Вес (г)	Время измерения (сутки)	Число импульсов	T/C (годы)
Продукт возгонки из конкреций в токе водотока	40	94	I	$\geq 1,5 \cdot 10^{22}$
Продукт возгонки в конкреции в вакууме	40	93	I	$\geq 1,5 \cdot 10^{22}$

5. В результате пробирного анализа пробы конкреций весом 0,2 кг был получен королек весом 0,32 мг, в который практически полностью были извлечены серебро и золото. Содержание этих металлов в образце следующее: серебро $\approx 96\%$, золото - $3,8\%$.

Результаты измерений с пересчитанными образцами представлены в табл. 4.

Полученные результаты позволяют сделать некоторые выводы относительно пределов содержания сверхтяжелых элементов в железо-марганцевых конкрециях. Заключение, основанное на данных измерений активности конкреций на нейтронных детекторах, практически не зависят от предположений о химических свойствах сверхтяжелых элементов. Однако при интерпретации этих данных, как видно из табл. 2, необходимо сделать определенное предположение о величине среднего числа нейтронов, сопровождающих спонтанное деление сверхтяжелых элементов. Если, следуя предсказаниям Никса^{/11/} и Шмитта и Мозеля^{/12/}, считать $\bar{\nu} > 5$, то получаются особенно высокие пределы: $T/C \geq 3-6 \cdot 10^{23}$ лет.

Более высокие пределы T/C оказываются для элементов с $Z = 112-115$, если предположить, что в химических экспериментах эффективность их обогащения была такой же, как у легких аналогов. Сознвая условность такого предположения, когда концентрация интересующих примесей находится на уровне 10^{-15} г/г, укажем, тем не менее, нижние пределы величин T/C: для ртути и таллия $5 \cdot 10^{23}$ лет, для свинца - $2 \cdot 10^{24}$ лет, а для висмута - $4 \cdot 10^{24}$ лет.

Указанные пределы не столь далеки от той чувствительности, которая требуется для проведения поисков в конкрециях сверхтяжелых ядер космического происхождения. Учитывая, что для этих ядер предел периода полураспада может быть около 10^5 лет, находим на основании приведенных выше сведений об их потоке в космических лучах и данных о скорости роста тихоокеанских конкреций, что соответствующий нижний предел величины T/C равен $2 \cdot 10^{25}$ лет. Проведение поисков активности спонтанного деления, характеризующейся па-

Таблица 4

Номер образца	Вес (г)	Время измерений (сутки)	Число зарегистрированных импульсов	T/C (годы)
1	45	29	13	$\geq 1,3 \cdot 10^{21} \text{ x}$
2	20	35	1	$\geq 3 \cdot 10^{21}$
3	25	35	0	$\geq 3,5 \cdot 10^{21}$
4	25	23	0	$\geq 2,2 \cdot 10^{21}$
5	$3 \cdot 10^{-4}$	40	0	$\geq 4 \cdot 10^{16}$

x) Фон от деления урана вычтен.

раметром T/C около $2 \cdot 10^{25}$ лет или немного больше, представляется реальной задачей.

В заключение авторы выражают благодарность проф. И.Зваре за полезные советы и обсуждение результатов, проф. А.С.Монину и члену-корреспонденту АН СССР П.Л.Безрукову за любезное содействие в получении материала для исследований, Л.И.Черниковой за помощь в проведении экспериментов.

Литература

1. Г.Н.Флеров, Г.М.Тер-Акопьян, Н.К.Скобелев, А.Г.Попеко, М.П.Иванов. Препринт ОИЯИ, Р6-7588, Дубна, 1973.
2. Г.Н.Флеров, Г.М.Тер-Акопьян, Л.С.Гецкин, Г.Н.Гончаров, А.Г.Попеко, Н.К.Скобелев, Б.А.Гвоздев, П.П.Цыб. Препринт ОИЯИ, Р6-7759, Дубна, 1974.
3. Дж.Меро. Минеральные богатства океана /перевод под редакцией К.К.Зеленова/ "Прогресс", Москва, 1969.
4. R.C.Harris, J.H.Crochet, M.Stainton. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 32, 1049 (1968).
5. P.H.Fowler, E.Kobetich, R.Thorne. *Comptes Rendus de la Colloque Intern. de Photographie Corpusculaire. Barcelone*, p. 313 (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.Отгосурэн, В.П.Перелыгин, Г.Н.Флеров. ДАН СССР, 189, 1200 /1969/; О.Отгосурэн. Автореферат диссертации. ОИЯИ, 7-7404, Дубна, 1973.
8. E.Cheifetz, R.C.Jared, E.R.Giusti and S.G.Thompson. *Phys.Rev.*, C6, 1348 (1972).
9. R.W.Stoughton, J.Halpern, J.S.Drury et al. *Nature Phys.Sci.*, 246, 26 (1973).
10. П.Л.Безруков. Вестник ДАН СССР, 5, 86-94 /1971/.
11. J.R.Nix. *Phys. Lett.*, 30B, 1 (1969).
12. H.W.Schmitt and U.Moel. *Nucl.Phys.*, A186, 1 (1972).

Рукопись поступила в издательский отдел
8 апреля 1974 года.