

0-809

23/III-71

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

2856/2-71

P7-5814



5814

О. Отгонсурэн, В.П. Перелыгин, С.П. Третьякова,
Ю.А. Виноградов

О ПОИСКАХ СЛЕДОВ ОСКОЛКОВ
СПОНТАННОГО ДЕЛЕНИЯ
ДАЛЕКИХ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
В ПРИРОДНЫХ МИНЕРАЛАХ

P7-5814

О. Отгонсурэн, В.П. Перельгин, С.П. Третьякова,
Ю.А. Виноградов

**О ПОИСКАХ СЛЕДОВ ОСКОЛКОВ
СПОНТАННОГО ДЕЛЕНИЯ
ДАЛЕКИХ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
В ПРИРОДНЫХ МИНЕРАЛАХ**

Направлено в АЭ

ГОСУДАРСТВЕННЫЙ ИНСТИТУТ
ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ
И МАТЕМАТИЧЕСКОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ
ОБЪЕКТ "ДВУХЭЛЕМЕНТНЫЙ"

Проблема существования относительно стабильных трансурановых элементов в области атомных номеров $Z \approx 114$ (≈ 126) и $N = 184$ привлекает все большее внимание исследователей, как теоретиков, так и экспериментаторов. В последние годы были выполнены эксперименты по обнаружению далеких трансурановых элементов в первичном космическом излучении ^{/1,2/}, по их синтезу в ядерных реакциях ^{/3/}, по поискам этих элементов в минералах, содержащих золото, платину и свинец ^{/4-7/}, в стеклах, содержащих тяжелые элементы ^{/8,9,10/}, в железо-марганцевых конкрециях ^{/11/}. Подробный обзор выполненных ранее исследований содержится в работе Г.Н. Флорова и А.С. Карамяна ^{/4/}. Отметим, что в ряде случаев с помощью диэлектрических детекторов и пропорциональных счетчиков наблюдался эффект, который может быть обусловлен спонтанным делением ядер неизвестного элемента ^{/8-11/}.

Настоящая работа является продолжением исследований по поиску далеких трансурановых элементов в природных минералах и стеклах, проводящихся методикой диэлектрических детекторов. Если для таких образцов можно независимым путем определить их абсолютный возраст, то необходимым условием обнаружения эффекта от спонтанного деления неизвестных элементов является превышение значений возраста, определенного по плотности следов спонтанного деления над значениями, полученными другими методами. Однако следует отметить, что данное условие не является достаточным. Существует целый ряд факторов, которые в

некоторых случаях могут приводить к завышению значений плотности следов на поверхности или в объеме исследуемого образца:

Во-первых, миграция урана из образца.

Во-вторых, фон, обусловленный дефектами кристаллической структуры - дислокациями и пустотелыми каналами (капиллярами).

В-третьих, эффект от деления ядер тяжелых элементов, содержащихся в образцах, частицами, генерируемыми первичным космическим излучением ^{/12,13/}, или нейтронным фоном, обусловленным земной радиацией ^{/14/}.

Существенным ограничением области применения методики диэлектрических детекторов является термическая регрессия следов за геологические отрезки времени, приводящая к занижению плотности следов от спонтанного деления. Чувствительность данной методики, как нетрудно видеть, определяется не только временем экспозиции и свойствами неизвестных спонтанно делящихся ядер, но и содержанием изотопа урана - ²³⁸U, создающего фон следов осколков спонтанного деления.

Целью настоящей работы были поиски эффекта от спонтанного деления неизвестных трансурановых элементов в минералах земного происхождения. Нами отбирались минералы из различных гидротермальных образований: пегматитовых месторождений, кварцевых жил, сульфидных рудопроявлений. Исследовались минералы, содержащие свинец или находившиеся в контакте со свинцовыми соединениями, а также минералы, в которых могло осуществляться изоморфное вхождение свинца, висмута, таллия, элементов платиноидной группы, редкоземельных элементов ^{x/}.

Возраст этих образцов был с большой степенью надежности установлен другими методами; для большинства минералов он был измерен

^{x/} Авторы выражают глубокую признательность Г.Н. Гончарову за полезные консультации и подробное обоснование постановки опытов по поискам далеких трансурановых элементов в первичных минералах.

калий-аргоновым методом. Обычно минерал являлся источником и детектором осколков спонтанного деления ядер. На некоторых образцах источником спонтанного деления служил один минерал (или химическое соединение), а детектором – минерал, находившийся в контакте с исследуемым объектом. Использование таких образцов позволяет несколько расширить круг исследований. В наших опытах исследовались контакты галенита, козалита и пирита с кварцем, соединений железа с кварцем и альбитом.

Нами исследовалось большое число минералов из группы слюд: литиевый мусковит, биотиты и флогопиты из различных месторождений. В этих минералах в процессе кристаллизации могли концентрироваться ионизованные атомы тяжелых элементов с большим ионным радиусом, в частности дважды ионизованные атомы 114-го элемента.

Для большинства слюд определенные нами значения абсолютного возраста существенно меньше, чем данные, полученные калий-аргоновым методом. Этот результат обусловлен, очевидно, термической регрессией следов осколков деления в слюде за геологические отрезки времени. Однако для одного из образцов – флогопита – возраст был найден равным $(5,5 \pm 1,7)$ млн.лет, в то время как согласно измерениям, выполненным калий-аргоновым методом, он составляет 1,7 млн.лет.

Эксперименты, проведенные с образцами поллуцита, микроклина и амазонита (содержание свинца в амазонитах было 10^{-1} – 10^{-2} %) из различных месторождений показали, что возраст, измеренный по плотности следов осколков спонтанного деления, оказался во много раз меньше значений абсолютного возраста этих минералов.

Несколько лучшее согласие значений возраста было получено для минералов вульфенита (≈ 100 млн. лет – трековым методом при значении возраста месторождения 200 млн.лет) и аурипигмента (соответственно ≈ 60 млн. и 100 млн.лет).

Исследование большого числа контактов свинцовых и висмута-свинцовых минералов с кристаллами горного хрусталя показало, что на поверхности кварца выявляется значительное количество следов, обусловленных дефектами кристаллической решетки. Это обстоятельство делает невозможной надежную идентификацию следов осколков деления при плотностях $\leq 10^2$ 1/см². В одном из образцов - горном хрустале (возраст месторождения 250 млн.лет) - на поверхности и в объеме кварца нами были обнаружены кристаллы железного колчедана-пирита. Поскольку в железном колчедане могло происходить изоморфное замещение ионов серы ионами элементов платиноидной группы, в частности осмия, мы предприняли исследования контактов кварца и пирита. Размеры кристаллов пирита составляли от 0,5 до 3-4 мм, поверхности кварца, контактирующие с пиритом, в большинстве случаев практически не содержали дефектов кристаллической структуры, которые могли имитировать следы от осколков деления ядер. Травление кварца производилось в 50%-ном растворе *NaOH* при температуре 140°C в течение 60-80 мин. На ≈ 10 мм² площади кварца было найдено 2 следа осколков деления; измерения содержания урана на поверхности кристаллов пирита, произведенные с помощью низдофоновых детекторов - синтетической слюды, лавсана и кварца - дали величину около $4 \cdot 10^{-9}$ г/г урана. Эта концентрация урана могла обусловить появление от одного до четырех осколков деления на 10 мм² кварца за 250 млн.лет.

В некоторых случаях кристаллы пирита, находившиеся вблизи поверхности горного хрусталя, были разрушены в результате воздействия влаги, и углубления, имеющие форму кристаллов пирита, были заполнены порошкообразной массой, состоящей из окислов и гидроокислов железа. Измерения плотности следов осколков спонтанного деления в углублениях дали величину от $(3-5) \cdot 10^4$ до $(1-3) \cdot 10^5$ 1/см².

Нами были произведены измерения содержания урана в веществе, заполнявшем эти углубления. Из углубления, имевшего размеры 2 x 2 мм²

удалось извлечь неповрежденным слой замещающего вещества. Это вещество было помещено в контакт с поверхностью лавсана и облучено тепловыми нейтронами. Содержание урана в нем было найдено равным $(1,2 \pm 0,2) \cdot 10^{-6}$ г/г. Исходя из измеренной нами плотности следов осколков спонтанного деления в этом углублении - $(2,0 \pm 0,2) \cdot 10^5$ 1/см², - возраст контакта составляет $(1,0 \pm 0,2)$ млн.лет, то есть существенно превосходит возраст месторождения горного хрусталя - 250 млн.лет. Результаты, полученные для кристаллов горного хрусталя и флогопита, могут быть обусловлены миграцией урана из исследовавшихся образцов за счет воздействия вод на соединения урана, которые содержатся в плоскостях расслоения слюды или в мелкодисперсном замещающем веществе из углублений в кварце.

Другим объяснением наблюдаемой аномалии может служить гипотеза о спонтанном делении неизвестного элемента, который входит в кристаллическую решетку слюды или адсорбируется мелкодисперсным веществом, замещающими пирит в горном хрустале.

Отметим, что в ряде случаев в литературе приводятся данные о существенном превышении возраста, измеренного методом диэлектрических детекторов, над значениями, определенными другими методами.

Так, в исследованиях Д. Миллера, выполненных еще в 1967 году, сообщалось об измерениях возраста слюд из различных районов Северной Америки ^{/15/}. Д. Миллер обнаружил, что возраст некоторых пегматитов, определенный трековым методом, составлял от 600 до 1700 млн.лет, в то время как согласно калий-аргоновому и рубидий-стронциевому методу возраст этих слюд равняется 255 млн.лет. Автор подчеркнул, что это несоответствие требует дальнейших исследований и предположил, что оно может быть обусловлено миграцией урана из образцов слюды.

В работе Флейшера, Прайса и Уокера ^{/16/} приводятся данные об избыточной плотности следов тяжелых частиц в минералах, извлеченных

из внутренних частей метеоритов. Авторы /16/ приходят к заключению, что наблюдаемый эффект обусловлен спонтанным делением ^{244}Pu , синтезированного в процессе образования солнечной системы. Однако и здесь необходимо произвести более детальное рассмотрение других гипотез, в частности, пока нельзя исключить эффект от деления содержащихся в этих минералах ядер тяжелых элементов - U , Th , Bi , Pb и других - быстрыми частицами, генерируемыми первичным космическим излучением. Другая гипотеза - объяснение наблюдаемого в минералах из метеоритов эффекта спонтанным делением далеких трансурановых элементов - недавно детально обсуждалась в работе /6/. Авторы работы /6/ заключили, что поскольку средняя длина следов в этих минералах не превосходит средней суммарной длины двух осколков от деления урана нейтронами, а также поскольку вероятность тройного деления по отношению к двойному составляет $<10^{-4}$, эффектом от спонтанного деления далеких трансурановых элементов можно пренебречь.

Рассмотрим подробнее аргументацию авторов /6/. В своих вычислениях они предполагали, что суммарная кинетическая энергия осколков деления ядер в области $Z=110-114$ составляет 216-235 Мэв. Однако экспериментальные измерения энергии осколков деления ядер, образованных в реакции $^{238}\text{U} + 300 \text{ Мэв } ^{40}\text{Ar}$ ($Z=110$), показали, что средняя суммарная энергия двух осколков не превосходит 200 Мэв /17/. Нами были проведены прямые измерения длин следов осколков деления ядер урана ионами аргона и кальция в мусковите /18/.

На рис. 3 представлены распределения длин следов осколков деления из реакции $U + 380 \text{ Мэв } ^{40}\text{Ar}$, $U + 300 \text{ Мэв } ^{40}\text{Ca}$ (под углом 90° к пучку ионов) и следов осколков спонтанного деления ^{244}Cm в слюде мусковит, обработанной в одинаковых условиях /18,19/.

Как следует из рис. 3, средняя длина осколков деления составляет около 8 мк для всех спектров, хотя для осколков, генерируемых в реакциях с тяжелыми ионами, наблюдается более широкое распределение длин по сравнению со спектром от ^{244}Cm .

При рассмотрении вопроса о вероятности деления далеких трансуранических элементов на три осколка сравнимой массы авторы ^{16/} не учитывают того обстоятельства, что эта вероятность быстро падает с уменьшением энергии возбуждения составного ядра. Наши исследования показывают, что с уменьшением энергии бомбардирующих частиц от 300 до 230 Мэв (реакция $^{238}\text{U} + ^{40}\text{Ar}$) отношение вероятности тройного деления к двойному уменьшается в 10 раз.

Простая экстраполяция показывает, что для ядер далеких трансуранических элементов ($Z \approx 110-114$), находящихся в основном состоянии, эта вероятность будет порядка $P_{3f} / P_{2f} < 10^{-3} - 10^{-4}$ (рис. 4). Таким образом, оба аргумента, приведенные в работе Флейшера и Прайса, не находят достаточного экспериментального обоснования, по крайней мере для области $Z = 110-114$, и вопрос о происхождении избыточной плотности следов в минералах из метеоритов требует дальнейшего изучения.

Возвращаясь к проблеме поисков эффекта от спонтанного деления далеких трансуранических элементов в природных минералах и стеклах, отметим, что несмотря на высокую чувствительность и простоту применения методики диэлектрических детекторов, оказывается весьма затруднительным сделать окончательное заключение о природе наблюдаемого эффекта. Однако данные, полученные с помощью этой методики, могут служить отправной точкой для проведения дальнейших исследований с помощью высокочувствительных пропорциональных и нейтронных счетчиков, масс-сепараторов, пластиковых камер и некоторых других методик.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность профессору Г.Н. Флерову за постановку задачи и полезные обсуждения.

Авторы весьма признательны Г.П. Барсанову, Л.Л. Шанину, Ю.П. Дикову и Г.Н. Гончарову за предоставленные в наше распоряжение многочисленные образцы минералов, а также И.А. Смольяниновой, Г. Сун Цзын Ян, А.И. Калинину за проведение анализа химического состава некоторых минералов.

Л и т е р а т у р а

1. P.H.Fowler, V.M.Claphan, V.G.Cowen, J.M.Kidd and R.T.Moses. Proc. Roy. Soc. L. 318A, p. 1-43 (1970).
2. P.B.Price, R.M.Fleischer, D.D.Peterson, C.O' Ceallaigh, D.O.'Sullivan, A.Thompson. Acta Phys. Hungarica, 29 suppl. 1, 417 (1970).
3. S.G.Thompson. The report at APS meeting, Miami, nov. 25-27, 1968.
4. Г.Н. Флеров, С.А. Карамян. Доклад, представленный на Международный Менделеевский конгресс в Турине (Италия, сентябрь 1969). Препринт ОИЯИ, Р6-4902, Дубна, 1970.-
5. A.Wyittenbach, Z.Naturforsch. 25a, 307-308 (1970).
6. P.B.Price, R.L.Fleischer. Phys.Letters, 30B, No 4, p. 246 (1970).
7. P.B.Price, R.L.Fleischer and R.T.Woods. Phys. Rev., 1, No 5, 1819-21 (1970).
8. Г.Н. Флеров, В.П. Перельгин. АЭ, 26, 520 (1969).
9. Г.Н. Флеров, Н.К. Скобелев, Г.М. Тер-Акопьян и др. Препринт ОИЯИ, D6-4554, Дубна, 1969.
10. Э. Цесляк. Препринт ОИЯИ, P15-4738, Дубна, 1969.
11. О. Отгонсурен, В.П. Перельгин, Г.Н. Флеров. ДАН СССР, 189, №6, 1200 (1969).
12. А.В. Подгурская, В.И. Калашникова, С.А. Столяров, Е.Д. Воробьев, Г.Н. Флеров. ЖЭТФ, 28, 503 (1955).
13. Х. Абдуллаев. Автореферат диссертации. Препринт ОИЯИ, 16-4489, Дубна, 1969.
14. Ю.А. Шуколюков. Деление урана в природе. Атомиздат, М., 1970.
15. D.S.Miller. Earth and Planetary Science Letters, 4, 379-383 (1968).

16. R.L.Fleischer, P.B.Price and R.M.Walker. Geochim. Cosmo-
chim. Acta, 32, p. 21 (1968).
17. С.А.Карамян, И.В. Кузнецов, Ю.Ц. Оганесян, Ю.Э. Пенионжкевич.
Ядерная физика, 6, 494 (1967).
18. V.P.Perelygin, S.P.Tretiakova, N.H. Shadieva, A.H. Boos and
R.Brandt. Nucl. Phys., A127, 577-585 (1969).
19. V.P.Perelygin, S.P.Tretiakova, N.H. Shadieva and E. Cieslak.
Proceedings of the Intern. Conference on Nuclear Track regis-
tration, Clermont-Ferrand, May 6-9, 1969, v. 1, p. 28.

Рукопись поступила в издательский отдел
6 мая 1971 года.



Рис. 1. Следы осколков деления в углублении на поверхности кварца.

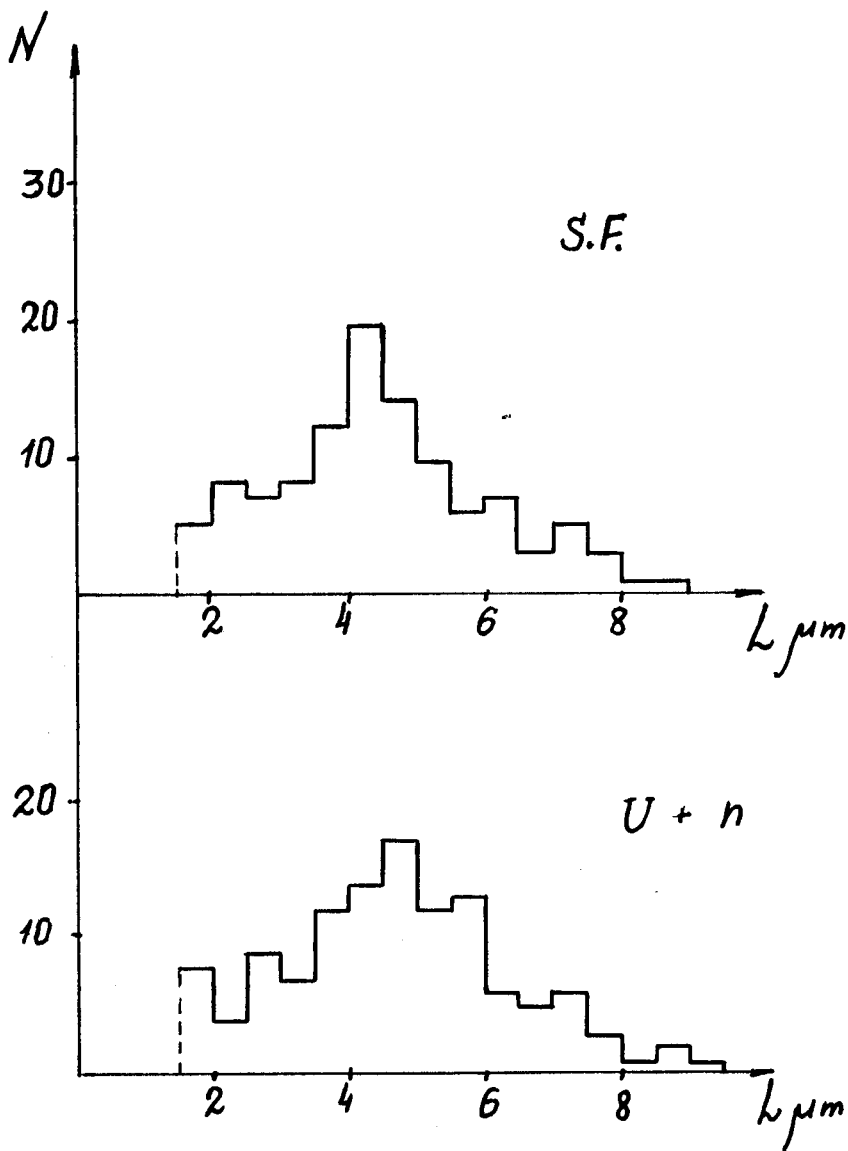


Рис. 2. Распределение длин следов осколков спонтанного и вынужденного деления в кварце.

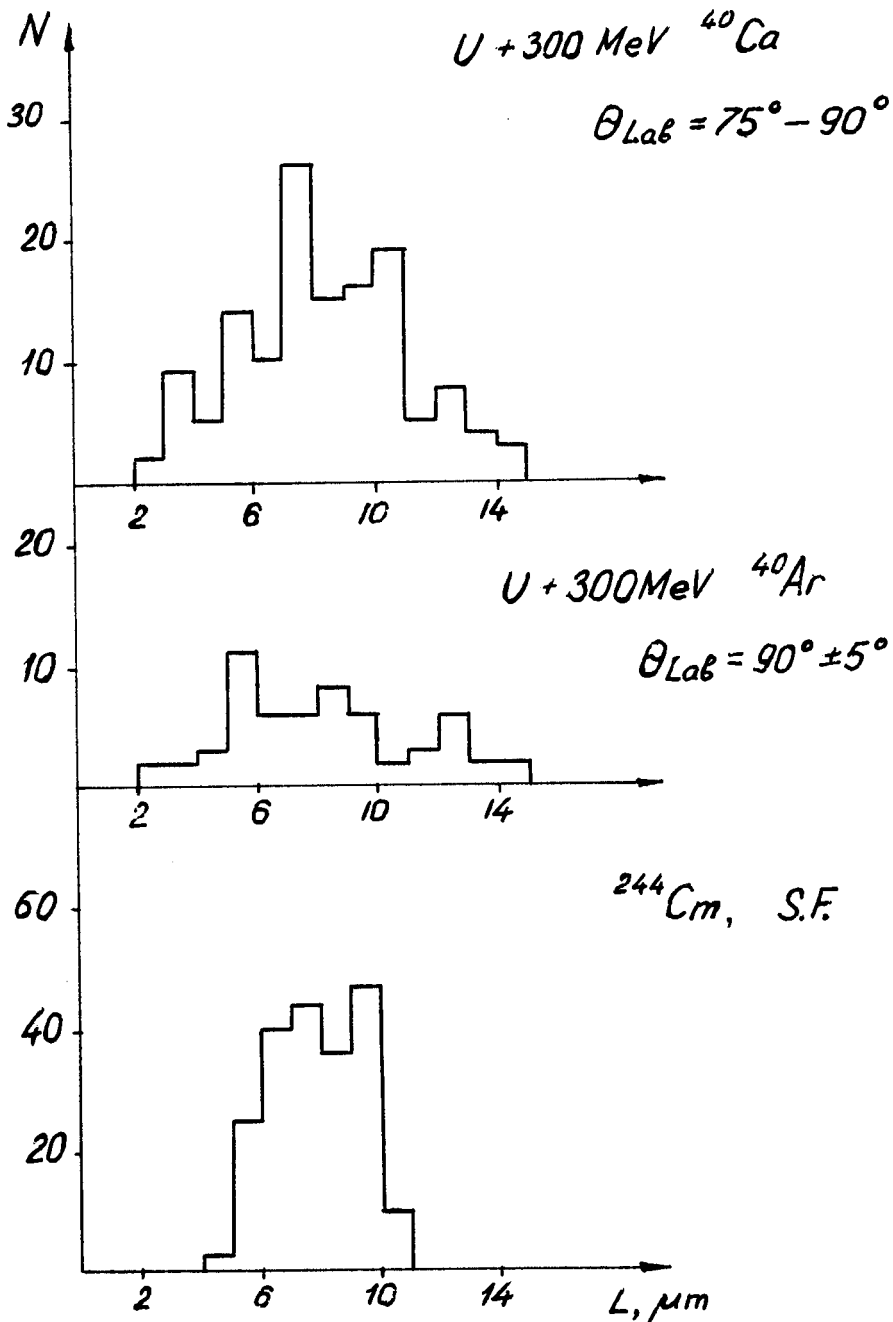


Рис. 3. Распределение длин следов осколков деления ядер, образованных в реакции $U + 300 \text{ Мэв } ^{40}\text{Ca}$, $U + 380 \text{ Мэв } ^{40}\text{Ar}$ и спонтанного деления ^{244}Cm . Режим отжига и травления слюды один и тот же для всех образцов.

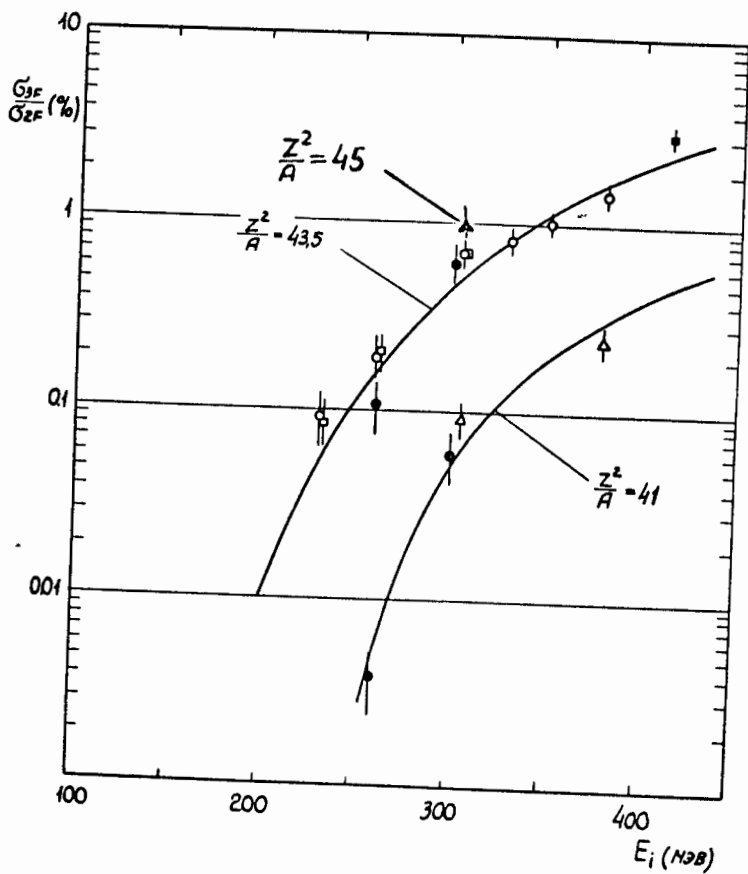


Рис. 4. Зависимость вероятности тройного деления по отношению к двойному от энергии бомбардирующих частиц.