

Ат. Журнал, 1972, т. 33, вып. 6, с. 979-980
12/611-72

Ф-716
ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

2364/2-72

P7 - 6495



Г.Н.Флеров, В.П.Перельгин, О.Отгонсурэн

О ПРОИСХОЖДЕНИИ СЛЕДОВ
ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ В СВИНЦОВЫХ СТЕКЛАХ

ОТГОНСУРЭН ОТГОНСУРЭН

1972

P7 - 6495

Г.Н.Флеров, В.П.Перельгин, О.Отгонсурэн

О ПРОИСХОЖДЕНИИ СЛЕДОВ
ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ В СВИНЦОВЫХ СТЕКЛАХ

Направлено в АЭ

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

1. Введение

Проблема существования новой области относительно стабильных сверхтяжелых трансурановых элементов привлекла в последние годы внимание большого круга исследователей - как теоретиков, так и экспериментаторов.

Однако выполненные в последнее время опыты по синтезу, а также поиску в природных образцах и первичном космическом излучении далеких трансурановых элементов пока не позволяют сделать однозначный вывод о существовании новой области стабильности для атомных номеров Z вблизи 114 (или 126). Подробный обзор теоретических и экспериментальных исследований, посвященных этой проблеме, содержится в /1,2,3/.

Целью настоящей работы явилось выяснение происхождения следов тяжелых частиц, обнаруженных нами в 1968 году при травлении защитных свинцовых стекол и хрусталя 19 века /4/. Такие же следы наблюдались в работе /5/, где наряду с большим числом свинцовых стекол исследовались образцы, содержащие висмут, вольфрам, ртуть.

Эффект, который наблюдался на части различных свинцовых стекол, соответствовал 2-10 делениям ядер на грамм свинца в год.

Как показали контрольные опыты, выполненные методом активационного анализа ^{4,5,6/}, спонтанное деление содержащихся в стеклах микропримесей урана могло обусловить не более 5% наблюдаемого числа следов; фон от деления тория, содержащегося в этих стеклах ($\leq 10^{-5}$ г/г ^{4/}), был пренебрежимо мал. Оценки вклада от деления ядер свинца нуклонной компонентной космического излучения, произведенные в работе ^{4/}, дали величину менее двух делений ядер на грамм свинца в год.

Эти оценки основывались на экстраполяции результатов опытов по определению вероятности деления ядер висмута и тория на высотах 18000-20000 м и ≈ 4000 м (Памир) ^{7/} и на данных о вероятности деления тория на уровне моря, полученных для широты Москвы ^{8/}. При проведении количественных оценок принималось во внимание, что сечение деления ядер свинца быстрыми нейтронами в области энергий до 200 Мэв, по крайней мере, в 2 раза меньше, чем сечение деления висмута ^{9/}, и что нуклонная компонента поглощается перекрытиями и стенами зданий.

Предполагалось также, что при погружении в атмосферу до уровня моря спектр нуклонной компоненты смещается в сторону меньших энергий ^{7/}, и что при переходе от широты 30° (Памир) к более высоким широтам интенсивность нейтронной компоненты на уровне моря практически остается постоянной ^{10/}.

На основании этих оценок в работе ^{4/} было сделано заключение о том, что фон, обусловленный космическим излучением, составляет, по-видимому, малую долю эффекта, обнаруженного в свинцовых стеклах, хотя "из-за отсутствия прямых экспериментальных данных о делении свинца космическими частицами на уровне моря этот эффект в настоящее время нельзя полностью исключить" ^{4/}. Этот результат получил, казалось, независимое подтверждение в опытах с большими про-

порциональными счетчиками, в которых для свинцовых стекол было получено значение от 2 до 4 делений на грамм свинца в год /11/. В то же время в опытах со счетчиками, загруженными разделенным изотопом свинца ^{208}Pb , за 160 суток экспозиции было зарегистрировано всего 4 импульса, что соответствовало примерно 0,5 деления на грамм в год.

Результаты, полученные в работах /4,5,11/, не нашли, однако, надежного подтверждения в опытах по регистрации актов спонтанного деления, выполненных с помощью ^3He нейтронных детекторов /2/. Эксперименты производились в шахте на глубине ~ 400 м, что исключало вклад от ядерно-активной компоненты космического излучения.

В этих опытах было установлено, что число двойных и тройных совпадений импульсов от нейтронов для свинцовой фракции полиметаллической руды и свинцового стекла в десятки раз меньше, чем следовало ожидать в предположении, что среднее число мгновенных нейтронов деления ν неизвестного спонтанно делящегося изотопа заключено в пределах от 5 до 10. Согласно оценкам, приведенным в /2/, эффект, наблюдавшийся ранее в этих образцах, можно объяснить спонтанным делением сверхтяжелых ядер, если предположить, что среднее число мгновенных нейтронов $\nu = 1,5$, что крайне маловероятно.

В связи с этим возникла необходимость проведения контрольных опытов с применением других способов регистрации осколков деления ядер.

II. Контрольные опыты по прямому наблюдению осколков спонтанного деления в свинцовых стеклах

Для проведения контрольных опытов нами были выбраны два образца рентгеновских защитных стекол, для которых наблюдаемый ранее эффект соответствовал (7 ± 2) и $(4,0 \pm 1,5)$ делений на грамм свинца в год /4,5/.

Поскольку существующие методики регистрации редких событий деления ядер обладают большой трудоемкостью ^{/12/} или не обеспечивают однозначной идентификации осколков деления ядер ^{/13/}, нами была специально разработана малофоновая методика, основанная на регистрации совпадений следов осколков в двух слоях полимерной пленки.

Образец измельчался в тонкий порошок на шаровой мельнице и наносился слоем $\sim 2 \text{ мг/см}^2$ на лавсановую пленку, служившую одновременно детектором осколков деления. К этому препарату прикладывались вплотную две тонкие пленки пластика. Слой пластика, прилежавший к препарату, имел толщину $\sim 6 \text{ мкм}$, что существенно меньше среднего пробега осколков деления в этом пластике — $16\text{--}18 \text{ мкм}$; толщина второго слоя была $\sim 70 \text{ мкм}$. Площадь пленки с исследуемым препаратом была от 1 до 4 м^2 , время экспозиции составляло ~ 100 суток.

Опыты по регистрации спонтанного деления ядер, содержащихся в свинцовых стеклах, проводились на глубине 30 м под землей, что, согласно данным работы ^{/14/}, по крайней мере, в 100 раз уменьшило уровень фона от космического излучения.

После экспозиции пластиковые детекторы помещались в 25% раствор NaOH , травление производилось при 20°C . Время травления составляло 40–50 часов. Поиски следов осколков деления осуществлялись методом искрового пробоя тонкого пластика. С этой целью он помещался на полированную металлическую поверхность и покрывался сверху слоем алюминиевой фольги. Между двумя металлическими поверхностями создавалась разность потенциалов 500–900 вольт.

Пробой происходил вдоль сквозных отверстий, образованных при травлении следов осколков деления. Поскольку травление дефектов поверхности лавсана также приводит к пробоям тонкого слоя пластика, для однозначной идентификации следов осколков деления производился просмотр второго слоя в области, непосредственно прилежавшей к мес-

ту пробоя. Так как число фоновых событий не превышало 2-4 на один дм^2 , такая процедура позволяла увеличить скорость поисков редких событий деления ядер в сотни раз по сравнению с обычным микроскопическим просмотром пленок по площади.

На 6 м^2 пленки, экспонированной со свинцовыми стеклами, методом совпадений было зарегистрировано 3 осколка вместо 25 осколков деления ядер, ожидавшихся на основании результатов измеренной нами плотности следов тяжелых фрагментов в этих стеклах. При этом, согласно расчету, фон от спонтанного деления примесей урана, содержащегося в защитных свинцовых стеклах, должен был составить один-два следа. Это обстоятельство поставило под сомнение возможность объяснения эффекта, наблюдаемого в свинцовых стеклах, спонтанным делением далеких трансурановых элементов.

Потребовался дополнительный тщательный анализ возможных причин фона в стеклах.

III. Происхождение следов заряженных частиц, обнаруженных в свинцовых стеклах

Одним из источников фона в стеклах кроме деления ядер урана и тория может явиться спонтанное деление техногенных изотопов трансурановых элементов - плутония, кюрия, калифорния. Содержание спонтанно делящихся примесей в исследуемом образце, как указывалось в /15/, определяет верхнюю границу чувствительности методики поисков далеких трансурановых элементов по избыточной плотности следов осколков деления.

Однако, если для определения вклада от спонтанного деления урана достаточно измерить его концентрацию, например, методом акти-вационного анализа /6/, то вопрос исключения фона от спонтанного

деления изотопов калифорния или кюрия требует дополнительного анализа (16). Действительно, при поисках очень малых эффектов опасными могут быть концентрации ^{244}Cm до 10^{-14} г/г и ^{252}Cf до 10^{-20} г/г.

В нашем случае образцы представляют собой монолитные бруски свинцового стекла, изготовленные до появления техногенных спонтанно делящихся ядер. Применявшаяся нами процедура травления позволяла выявлять следы осколков деления в объеме стекла. Отметим, что проведение этих опытов предъявляет определенные требования также и к чистоте травящих растворов.

Как показывают простые оценки, опасные значения концентрации кюрия и калифорния в плавиковой кислоте или щелочи NaOH при 20 мин. травления составляют соответственно 10^{-6} г/г и 10^{-12} г/г; такие загрязнения химреактивов полностью исключены.

Другим источником фоновых следов в стеклах могут служить нейтроны и протоны, генерируемые в атмосфере первичным космическим излучением.

Взаимодействие нуклонной компоненты с ядрами элементов, входящих в состав стекла, приводит, во-первых, к образованию быстрых тяжелых фрагментов, которые могут приводить к появлению фоновых следов, имитирующих следы осколков деления.

Во-вторых, такие частицы могут вызывать деление ядер тяжелых элементов - свинца, висмута, таллия - в случае, если они являются одной из компонент стекла.

Учет этих эффектов требует детального знания условий хранения образцов, интенсивности нуклонной компоненты космического излучения в данном месте, а также определения порога чувствительности исследуемых стекол к тяжелым фрагментам.

Для определения чувствительности к тяжелым частицам образцы свинцовых и силикатных стекол облучались перпендикулярно поверхности

ионами ^{22}Ne , ^{31}P , ^{32}S , ^{40}Ar , ^{66}Zn , а также осколками деления ^{244}Cm . Энергия бомбардирующих частиц менялась в широких пределах. Образцы проявлялись в одинаковых условиях и производились измерения диаметров следов бомбардирующих частиц. Результаты этих измерений представлены на рис. 1. Как следует из рисунка, различные стекла имеют различный порог регистрации заряженных частиц. Кривые выходят на плато в области удельной ионизации, создаваемой ионами цинка. При дальнейшем росте ионизации диаметры проявленных следов не увеличиваются. Это обстоятельство свидетельствует о насыщении зоны дефектов, создаваемых сильноионизирующими частицами в стеклах.

Как видно из рис. 1, силикатное стекло способно регистрировать ионы, начиная с ^{22}Ne . Однако даже следы ионов серы четко отличаются по размерам от следов цинка (рис. 2). Аналогичная картина наблюдается для хрустала начала 19 века и рентгеновского защитного стекла, но с увеличением концентрации свинца порог регистрации смещается в сторону больших удельных потерь бомбардирующих частиц (рис. 1). Наименее чувствительным является образец синтетического стекла, в котором диаметры следов ионов цинка существенно меньше диаметров следов осколков деления.

Как следует из рис. 1, в свинцовых стеклах следы тяжелых фрагментов вплоть до ионов аргона имеют диаметр существенно меньший, чем следы осколков деления.

Согласно проведенным в работе [17] исследованиям, сечение образования фрагментов в области $Z \geq 18$ при взаимодействии 5,5 Гэв протонов с ураном не превышает 10^{-27} см².

Поскольку основная доля вторичных нуклонов, генерируемых космическим излучением на уровне моря, имеет энергию не больше нескольких сотен Мэв, вероятность образования ядер в области $Z \geq 18$ будет существенно ниже, чем при энергии 5,5 Гэв, и фоном от тяжелых фрагментов в стеклах можно, очевидно, пренебречь.

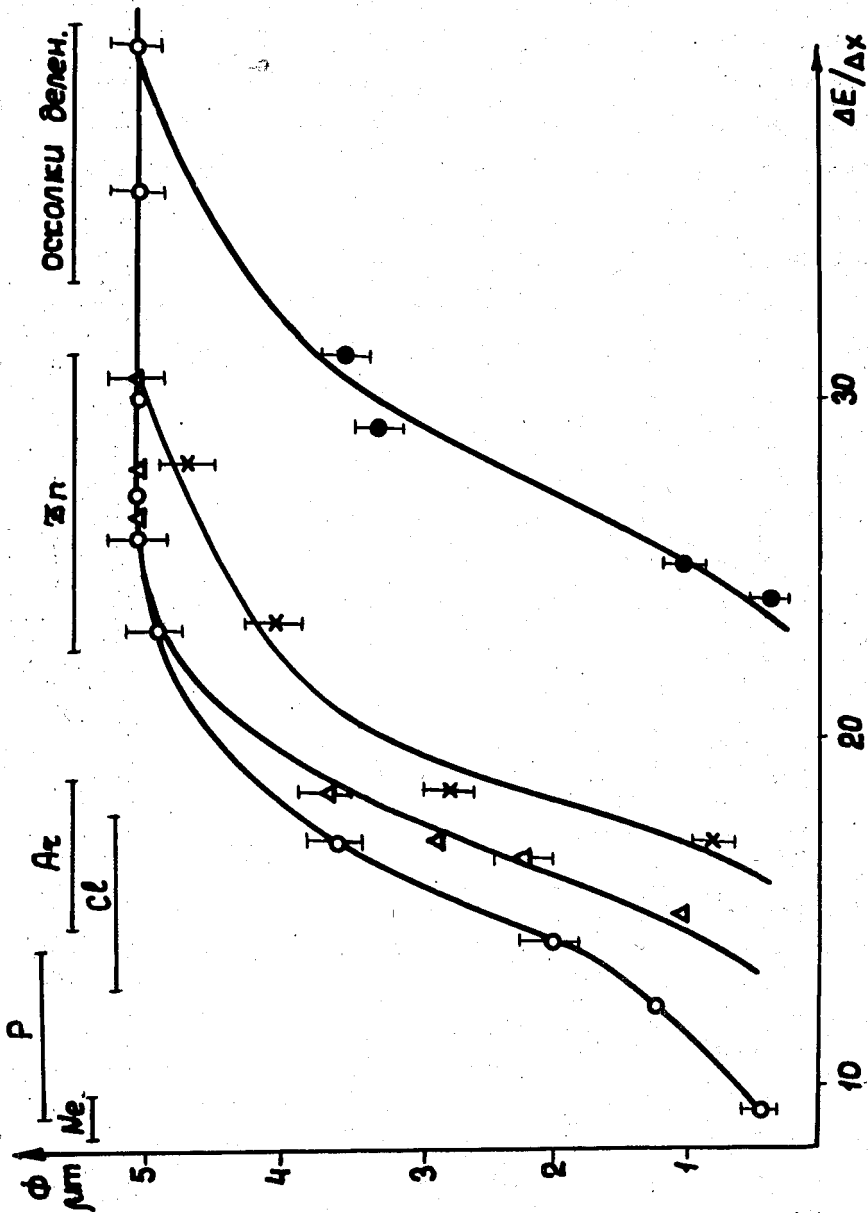


Рис. 1. Зависимость диаметров следов ионизации, создаваемой ионами ^{22}Ne , ^{32}P , ^{35}Cl , ^{40}Ar , ^{66}Zn и осколками деления ^{240}Cm в различных стеклах. \circ силикатное стекло; Δ хрусталь 19 века, \times свинцовое защитное стекло. \bullet синтетическое стекло.

Рассмотрим подробнее имеющиеся сведения о делении тяжелых ядер нуклонной компонентой космического излучения. Согласно данным работ /7,14,18/, эта компонента на 85-90% состоит из нейтронов. Спектр нейтронов характеризуется экспоненциальным спадом в области энергий от 10 до 10^4 Мэв /18/.

Поскольку сведений о делении свинца космическими частицами на уровне моря не имеется, мы обратились к данным о делении висмута этими частицами. Согласно работе /18/, вероятность деления висмута на геомагнитной широте $\lambda = 44^\circ$ северной широты (США) составляет 22 деления на грамм в год; экстраполяция результатов, полученных на широте Памира /7/, дает величину ~ 9 делений на грамм в год для висмута на широте Москвы.

В /14/ приведены результаты расчета скорости деления ядер свинца нуклонной компонентой космического излучения на уровне моря. Геомагнитная широта, для которой проведен расчет, не указывается. Согласно /14/, скорость деления свинца нуклонной компонентой составляет 10-12 делений на грамм в год.

Исходя из энергетического спектра нейтронов космического происхождения, можно заключить, что определяющий вклад в деление ядер свинца дают нуклоны в области от энергий порога деления $Pb - 40-50$ Мэв вплоть до нескольких сотен Мэв. Согласно имеющимся литературным данным, сечение деления свинца быстрыми нейтронами в этой области энергий в два-три раза меньше, чем висмута /19/. Необходимо, однако, отметить, что подробные данные о сечениях деления свинца и его изотопов в этой области энергий отсутствуют. Можно лишь предположить, что для дважды магического ядра ^{208}Pb , экспонированного в пропорциональном счетчике, сечение деления быстрыми частицами существенно ниже, чем для других изотопов свинца.

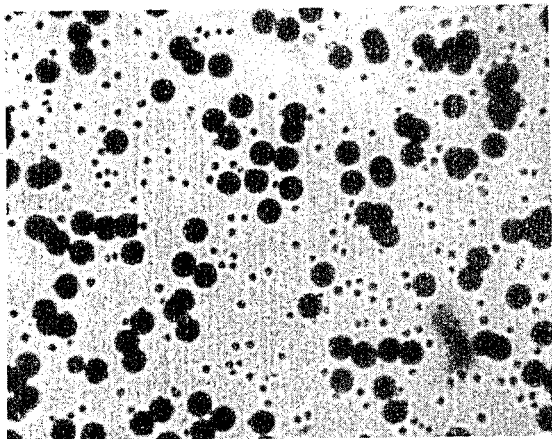


Рис. 2. Следы ионов цинка и серы на силикатном стекле.

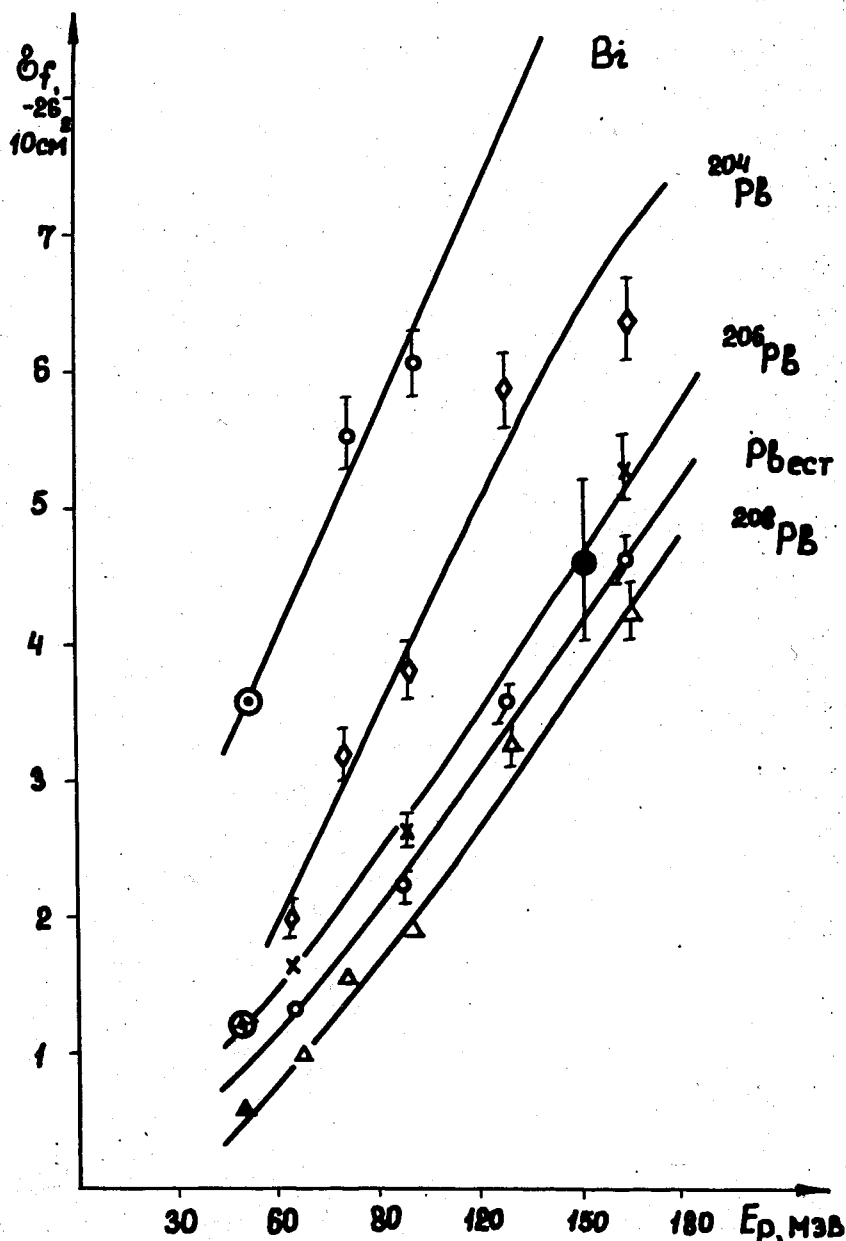


Рис. 3. Энергетические зависимости сечений деления ядер ^{204}Pb , ^{206}Pb , ^{208}Pb , естественно свинца и висмута протонами. Точки \bullet , \blacktriangle , \odot для энергий протонов 49,6 Мэв, приведенные на графике, взяты из работы /16/, точка \bullet из работы /9/.

Нами были поставлены опыты по определению сечений деления естественного свинца и его изотопов ^{204}Pb , ^{206}Pb , ^{208}Pb , а также висмута протонами в области энергий от 60 до 160 Мэв. В этих опытах использовались мишени из PbSO_4 , имевшие толщину 10 мг/см^2 - много большую пробега осколков деления. В качестве детектора применялись тонкие слои слюды; мониторинг пучка протонов производился с помощью калиброванных препаратов урана. Эксперимент был выполнен на внешнем пучке протонов синхроциклотрона ЛЯП. На рис. 3 приведены зависимости сечений деления свинца и его изотопов от энергии бомбардирующих частиц. Ошибка в измерении абсолютных значений - $\pm 15\%$ обусловлена главным образом неточностью определения эффективного слоя вещества $R_{\text{эфф}}$ для PbSO_4 /6/; статистическая ошибка составляет +4% для каждой точки. Данные на рис. 3 для сечений деления ^{206}Pb и ^{208}Pb хорошо согласуются со значениями сечений деления этих изотопов при энергии протонов 49,6 Мэв, полученными в работе /20/. Таким образом, учитывая форму спектра нуклонной компоненты космического излучения /18/, можно с уверенностью сказать, что наибольший вклад в наблюдаемый эффект дает деление свинца частицами при энергиях 50-200 Мэв; кроме того, можно заключить, что вероятность деления изотопа ^{208}Pb протонами примерно в 1,5 - 2 раза ниже, чем вероятность деления ядер естественного свинца.

В связи с невозможностью провести достаточно надежные количественные оценки, мы предприняли прямые опыты по определению вероятности деления свинца космическими частицами ($\lambda = 56^\circ$ северной широты).

С этой целью несколько квадратных метров фольги из свинца естественного изотопного состава были помещены в контакт с двойными слоями пластиковых детекторов. Они экспонировались затем без поглотителя, под открытым небом в течение 92 суток. На площади 1 м^2 плас-

тика было зарегистрировано 36 следов осколков деления свинца быстрыми частицами. С учетом эффективно работающего слоя ¹⁶/ вероятностность деления ядер свинца составила (15 ± 4) деления на грамм в год, что соответствует кажущемуся периоду спонтанного деления естественного свинца $\sim 1,4 \cdot 10^{20}$ лет.

На такой же площади пластика, находившегося в контакте со свинцом в помещении, где располагались пропорциональные счетчики (первый этаж двухэтажного здания, толщина перекрытий около 160 г/см^2), за то же время экспозиции было зарегистрировано 5 осколков деления, что примерно соответствует двум делениям на грамм свинца в год.

Отметим, что делением ядер свинца нуклонами космического излучения можно объяснить и эффект, наблюдаемый в первых экспериментах на лавсане, экспонированном в контакте со слоем свинца под землей в течение 100 суток ¹⁴/. Действительно, экспозиции под землей предшествовала процедура монтажа сборки и ее транспортировка к месту хранения; после экспозиции образец доставлялся обратно и демонстрировался. При этом образец находился в здании с толщиной перекрытий менее 30 см бетона.

Поскольку указанные операции занимали около трех суток, деление ядер свинца в сборке могло объяснить наблюдаемый эффект - $1,0 \pm 0,5$ деления на грамм в год.

Нами были предприняты попытки произвести дискриминацию следов осколков от деления ядер свинца быстрыми протонами (120-160 Мэв) и от деления урана нейтронами.

В этих опытах были измерены распределения диаметров следов осколков на хрустале 19 века и образцах защитных стекол.

Как видно из рис. 4, распределения диаметров следов осколков деления свинца быстрыми протонами и урана нейтронами подобны.

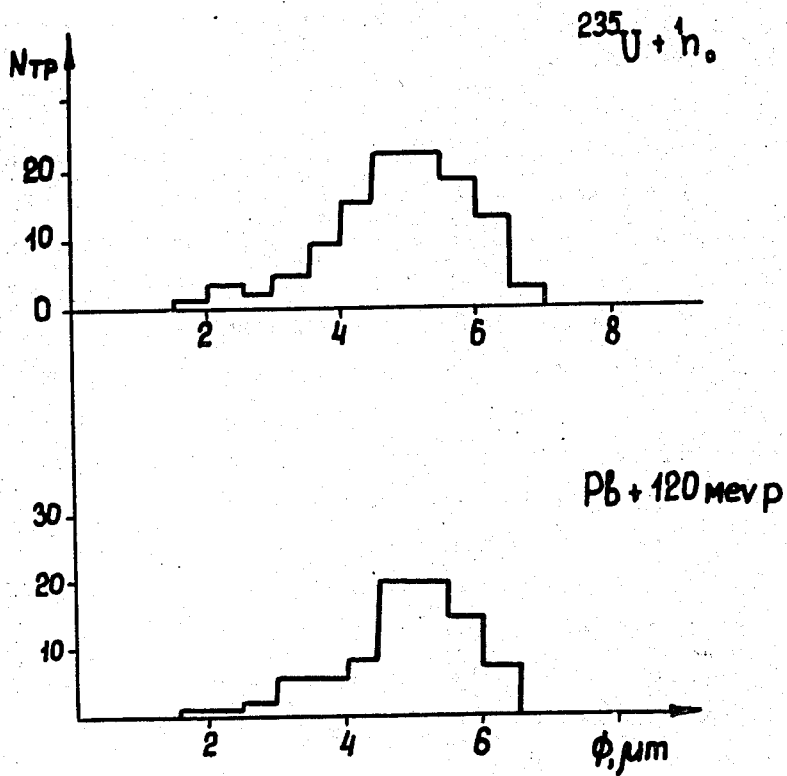


Рис. 4. Распределение диаметров следов осколков деления ^{235}U тепловыми нейтронами и свинца 120 Мэв протонами для рентгеновского защитного стекла.

Согласно частному сообщению Р.Л. Флейшера (США), эффект отдачи при взаимодействии быстрых протонов с ядрами свинца должен приводить к появлению характерных V-образных следов осколков деления в стеклах.

Однако проведенное нами определение формы треков в свинцовом стекле, облученном параллельно поверхности 120-Мэвными протонами, показало, что эффект отдачи проявляется в виде V-образных следов не более чем в 4% случаев. Таким образом, можно заключить, что следы осколков деления свинца быстрыми нуклонами ни по диаметру, ни по форме не отличаются от следов осколков деления более тяжелых ядер.

Заключение

Ранее было показано /4,5/, что в некоторых образцах старых свинцовых стекол имеются следы осколков деления, которые не могут быть обусловлены делением ядер урана или тория. Одним из возможных объяснений этого эффекта явилась гипотеза о спонтанном делении ядер неизвестного сверхтяжелого элемента.

Проведенные дополнительные эксперименты по анализу возможных причин появления фоновых следов показали, что рядом источников фона следует пренебречь. Вместе с тем было установлено, что деление ядер свинца быстрыми нуклонами космического происхождения может полностью обусловить наблюдаемый эффект, если эти стекла находились вдалеке от стен в помещениях с толщиной перекрытий не больше 10 см бетона, не обеспечивавших достаточной защиты от космического излучения.

В связи с тем, что условия хранения исследованных нами свинцовых стекол не известны, полученный ранее результат может служить лишь косвенным указанием на существование в природе долгоживущего спонтанно делящегося нуклида.

Стекла, содержащие в качестве основы свинец или другие тяжелые элементы, можно использовать для проведения таких поисков лишь в случае, когда известно, что со времени изготовления они хранились под толстым слоем перекрытий ($d \geq 200-300 \text{ г/см}^2$).

Вместе с тем показано, что в стеклах, не содержащих тяжелых элементов, космическое излучение не приводит к появлению фона, и митигирующего следы осколков деления. Это обстоятельство позволяет использовать в дальнейшем для поисков далеких трансурановых элементов большое число образцов стекол, как синтетических, так и природных.

Разработанная методика поиска редких событий деления ядер по наблюдению совпадений следов осколков в слоях пластика обеспечивает регистрацию эффекта на уровне 0,1 – 0,2 деления в год.

В заключение авторы выражают глубокую признательность Г.М. Тер-Акопяну, Н.К. Скобелеву, А.Г. Попеко за постоянную помощь при проведении этой работы и полезные обсуждения; В.И. Кудрявцеву, Г.С. Ходакову, А.Г. Пилькову за помощь в освоении методик измельчения твердых веществ и нанесении тонких однородных слоев на лавсановые подложки. Авторы благодарят также Л.В. Джолос, А.В. Сергееву, К.И. Меркину, Т.И. Рыбакову, принявших участие в разработке методики совпадений и обеспечивших обработку и просмотр многочисленных образцов стекол и пленок.

Литература

1. Г.Н. Флеров. Международная конференция по физике тяжелых ионов. Дубна, 11-17 февраля 1971 г. Сборник материалов конференции, стр. 43, изд. ОИЯИ Д7-5769, Дубна, 1971.
2. Г.Н. Флеров, Г.М. Тер-Акопян, Н.К. Скобелев, М.П. Иванов, А.Г. Попеко, В.Г. Субботин, Б.В. Фефилов, Е.Д. Воробьев. там же, стр. 61.
3. Г.Н. Флеров, И. Звара. Сообщение ОИЯИ Д7-6013, Дубна, 1971.
4. Г.Н. Флеров, В.П. Перелыгин. АЭ, 26, 520 (1969).

5. Э. Песьляк. Сообщение ОИЯИ Р15-4738, Дубна, 1969.
6. Х. Абдуллаев, А. Капусник, О. Отгонсурен, В.П. Перелыгин, Д. Чултэм. ПТЭ, № 2, (1968).
7. Г.Н. Флеров, В.И. Калашникова, А.В. Подгурская, Е.Д. Воробьев, Г.А. Столяров. ЖЭТФ, 36, 727 (1959).
8. Г.Н. Флеров, Д.С. Ключков, В.С. Скобкин, В.В. Терентьев. ДАН 118 69 (1958).
9. В.А. Коньшин, Е.С. Матусевич, В.И. Регушевский. ЯФ, 2, 682 (1965).
10. М.Кодاما. Phys.Soc. Japan 17, suppl. A-11, 441 (1962).
11. Г.Н. Флеров, Н.К. Скобелев, Г.М. Тер-Акопьян, В.Г. Субботин, Б.А. Гвоздев, М.П. Иванов. Сообщение ОИЯИ Д6-4554, Дубна, 1969.
12. А. Капусник, В.П. Перелыгин, С.П. Третьякова, В.И. Свидерский. ПТЭ, № 1, 43 (1968).
13. N.L.Lark. Nucl.InstrMeth., 67, 137 (1969).
14. Г.В. Горшков, В.А. Зябкин, Р.М. Яковлев. ЯФ, 13, 491 (1971).
15. О. Отгонсурен, В.П. Перелыгин, С.П. Третьякова, Ю.А. Виноградов. Сообщение ОИЯИ Р7-5814, Дубна, 1971.
16. A.Marinov, C.J.Batty, A.I.Kilvington, J.L.Weil, A-M-Friedman, C.W.A.Newton, V.J.Robinson, J.D.Hemingway, D.S.Mather. Rutherford Laboratory. Preprint RPP/NS/7, 1971.
17. А.М.Пошканер, G.W.Butler, E.K.Hyde. Phys.Rev., C3, 882 (1971).
18. N.Hess, W.Patterson, R.Wallace. Phys.Rev., 116, 445 (1959).
19. В.И. Гольданский, В.С. Пенькина, Э.З. Тарумов. ЖЭТФ, 29, 778 (1965).
20. Chodai-Joopari, Report UCRL-16489 (1966).

Рукопись поступила в издательский отдел
7 июня 1972 года.