

п-573

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



9/11-74

4756/2-74

P7 - 8042

А.Г.Попеко, Г.М.Тер-Акопьян,
Г.К.Скобелев, Г.Н.Гончаров

ПОИСК СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
В МЕТЕОРИТАХ

1974

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

P7 - 8042

А.Г.Попеко, Г.М.Тер-Акопьян,
Г.К.Скобелев, Г.Н.Гончаров

ПОИСК СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
В МЕТЕОРИТАХ

Направлено в ЯФ

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

Для поисков в природе сверхтяжелых элементов с $Z = 110-126$ ^{/1/} особый интерес представляют некоторые метеориты - углекислые и неравновесные хондриты. Метеориты этого типа по своему составу, по-видимому, наиболее близки к первичному веществу протопланетной туманности^{/2,3/}. Высокое содержание Jr , Bi , Tl , Hg , Pb , J , Ba в веществе этих метеоритов позволяет предполагать, что условия их образования были благоприятными для захвата летучих элементов. В ряде работ предсказывается повышенная летучесть для элементов с $Z = 112-120$ и можно надеяться, что концентрация гипотетических сверхтяжелых элементов в указанных типах метеоритов будет также повышена.

Еще одно обстоятельство делает метеориты этого типа привлекательными объектами для поисков следов сверхтяжелых элементов. Андерс и Хейманн^{/4/} предложили гипотезу, связывающую аномалии типа Ренаццо в изотопном составе ксенона, в углистых и неравновесных хондритах со спонтанным делением сверхтяжелых элементов.

В спектрах тяжелых изотопов ксенона, выделяемого из углистых и неравновесных хондритов и богатых кальцием ахондритов наблюдаются аномалии двух типов. Например, для метеоритов Ренаццо и Пасамонте содержание в избыточном ксеноне изотопов с массами 130-136 представляется пропорциями^{/2/}:

	¹³⁰ Xe	¹³¹ Xe	¹³² Xe	¹³⁴ Xe	¹³⁶ Xe
Ренаццо	0	0,25	0,48	1	1,43
Пасамонте	0	0,27	0,44	1	1,07

Александр и др.^{/5/} показали, что аномалии типа Пасамонте объясняются спонтанным делением ^{244}Pu . Дополнительным подтверждением такого объяснения служат исследования корреляций содержаний различных элементов и избыточного содержания Хе /например, корреляция европий-ксенон/, выполненные методом факторного анализа одним из авторов настоящей работы /Г.Н. Гончаровым/.

Количество ксенона в углистых и неравновесных хондритах на несколько порядков превышает его возможный выход при спонтанном и вынужденном делениях урана и тория. Повышенное содержание ^{136}Xe не может быть объяснено облучением метеоритов нейтронами, т.к. воздействие нейтронных потоков привело бы к возникновению аномалий в содержаниях изотопов других элементов, которые на опыте не наблюдались^{/6/}.

Детальное изучение выходов изотопов Хе при спонтанном делении плутония, кюрия и калифорния^{/5,7,8/} выявило тенденцию к увеличению выходов тяжелых изотопов ксенона при увеличении массы делящегося ядра, что позволяет высказать предположение о том, что источником избыточного ксенона в углистых и неравновесных хондритах является изотоп, более тяжелый чем калифорний.

В пользу гипотезы о связи избытка ксенона с существованием сверхтяжелых элементов говорят также данные о форме нахождения ксенона в веществе метеоритов^{/2,9,10/} и о корреляциях содержаний избыточного ксенона с концентрациями других элементов^{/10,11/}. Такие исследования позволяют оценить физические и химические свойства элемента - прародителя избытков тяжелых изотопов ксенона в углистых и неравновесных хондритах, которые оказываются близкими к свойствам гипотетических сверхтяжелых элементов, предсказанным на основе экстраполяции свойств известных элементов^{/11,12/}.

Некоторые авторы пытались оценить период полураспада возможного прародителя избытков ксенона в метеоритах. Андерс и Хейманн^{/4/} приводят значения периода полураспада $T > 2.10^6$ лет и возможной концентрации

гипотетического сверхтяжелого элемента во время образования хондритов $C > 1,2.10^{11}$ г/г для метеоритов, наиболее богатых ^{136}Xe /. Шрамм^{/13/} оценивает период полураспада прародителя избыточного ксенона как $1,7.10^7$ лет $< T < 7.10^7$ лет на основании теоретических представлений о нуклеосинтезе и при различных предположениях о выходах изотопов ксенона при распаде этого элемента. Шрамм и Фаулер^{/14/} на основании расчетов выхода элементов с $Z = 110-120$ в нуклеосинтезе и используя данные^{/15/} об избыточной плотности треков осколков деления в кристаллах из некоторых метеоритов приводят значение периода полураспада сверхтяжелых элементов $T = 4.10^8$ лет. Даковский^{/16/} оценивает период полураспада родоначальника ксенона как 2.10^6 лет $< T < 6.10^7$ лет, используя представления о возрастах метеоритов различных типов.

Следует отметить, что гипотеза о связи аномалий в изотопном составе ксенона в углистых и неравновесных хондритах со спонтанным делением сверхтяжелых элементов, несмотря на свою привлекательность, встречает ряд серьезных возражений. Например, обнаружены^{/9/} корреляции избыточных содержаний тяжелых $^{134}, ^{136}\text{Xe}$ и легких $^{124}-^{129}\text{Xe}$ изотопов, а также корреляции ^{136}Xe и ^{86}Kr ^{/17/}. Не удастся предположить непротиворечивый механизм, объясняющий наличие таких связей с позиций гипотезы о сверхтяжелом прародителе ^{134}Xe и ^{136}Xe . Это, возможно, свидетельствует об иной природе состава благородных газов в углистых и неравновесных хондритах.

Хотя гипотеза Андерса и Хеймана к настоящему времени обоснована недостаточно, она представляет интерес для выбора объектов исследования при поисках в природе сверхтяжелых элементов^{/18/}. Приведенные оценки периода полураспада изотопа - возможного прародителя избыточного ксенона не слишком убедительны. Кроме того, чувствительность развитых методов поисков сверхтяжелых элементов настолько высока, что попытка поисков возможного прародителя избыточного ксенона представляется оправданной и целесообразной. Такие поиски могут

быть основаны на регистрации редких актов спонтанного деления в образцах метеоритов. Данные о метеоритах, представляющих наибольший интерес для поисков гипотетических сверхтяжелых элементов, помещены в таблице 1.

Для проведения настоящей работы из метеоритной коллекции Комитета по метеоритам Академии наук СССР были выбраны образцы метеоритов "Саратов", "Ефремовка" и "Алленде". Еще один образец метеорита "Алленде" /весом 22,5 кг/ был любезно предоставлен нам Национальным музеем естественной истории США.

Наибольшими преимуществами при поисках редких актов спонтанного деления в образцах метеоритов обладают детекторы множественного испускания нейтронов, т.к. подобные детекторы позволяют без разрушения образца достигнуть рекордной чувствительности. Нами был сконструирован специальный детектор, представлявший собой набор блоков из органического стекла. Внутри блоков, служивших замедлителями и отражателями нейтронов, имелись каналы, в которых располагались 24 пропорциональных счетчика, наполненных ^3He до давления 7 атм. Принцип действия установки проиллюстрирован *рис. 1*. Исследуемый образец помещался между

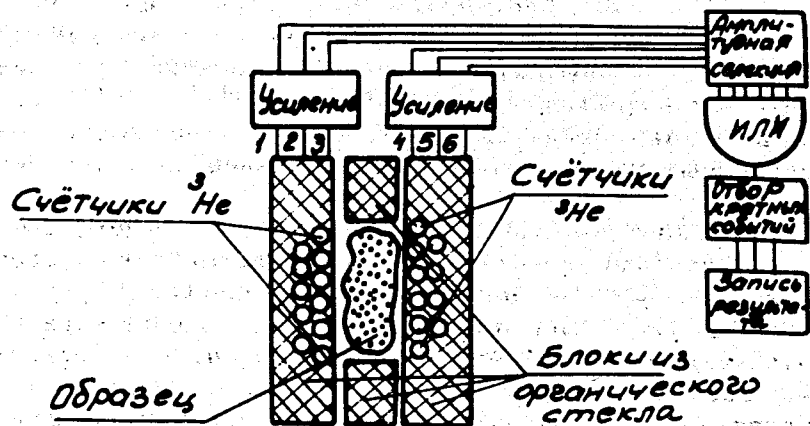


Рис. 1. Блок-схема установки.

Таблица 1^х

Метеорит	Тип	Избыточный ^{136}Xe -10^{-12} см ³ /гр	Концентрация ^{238}U -10^{-8} г/г
Ефремовка	СЗ	108	4
Алленде	СЗ	45	1,62
Мягеи	С2	97	1,64
Оргей	С1	54	2,4
Грозная	СЗ	41	-
Саратов	Л4	27	0,87
Ренаццо	СЗ	14	1,15
Ивуна	С1	41	0,95
Ланса	СЗ	27	1,62

^х Таблица 1 составлена по данным многих авторов; за недостатком места мы их не перечисляем.

блоками со счетчиками. Взаимное расположение блоков при изучении образцов различного размера и формы могло изменяться с тем, чтобы обеспечить максимальную эффективность регистрации нейтронов, испускаемых образцом. Чувствительный объем достигал 30 дм^3 .

Регистрирующая схема детектора была рассчитана на выделение актов множественного испускания нейтронов из образца. Признаком спонтанного деления считалась регистрация хотя бы одного нейтрона; далее отбирались события, когда за короткий временной интервал после первого нейтрона происходила регистрация импульсов от второго, третьего и т.д. нейтронов /кратные события/.

По выходному сигналу счетчики были объединены в шесть групп, каждая из которых имела свой тракт усиления и амплитудной селекции. После амплитудной селекции сигналы со всех групп объединялись и поступали на регистрирующее устройство. Здесь производился подсчет импульсов, последовавших в течение временного интервала τ_0 после первого импульса. Длительность этого интервала зависит от среднего времени жизни нейтронов в системе образец-замедлитель - счетчики. На рис. 2 представлена зависи-

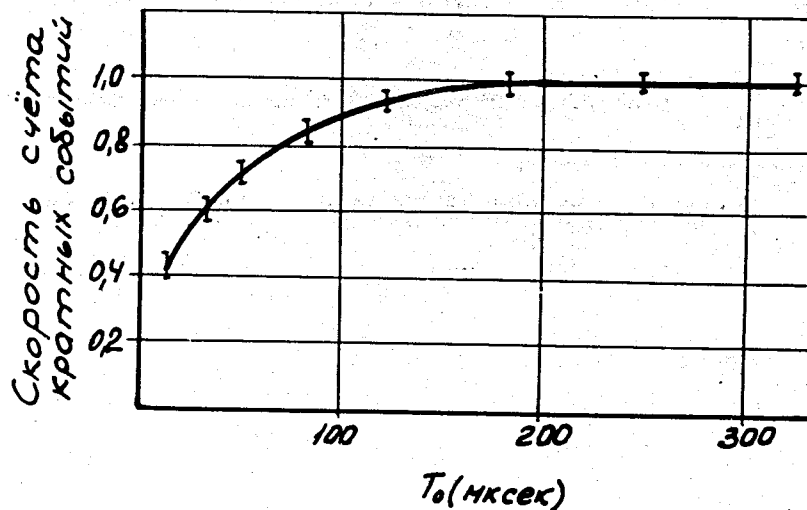


Рис. 2. Зависимость скорости счета событий с кратностью $n=2$ от длительности временного интервала τ_0 .

мость скорости счета кратных событий с препаратом ^{242}Pu от длительности временного интервала τ_0 . Найденное из этой зависимости среднее время жизни нейтронов оказалось равным 35 мксек . Измерения активности образцов выполнялись при фиксированной длительности временного интервала $\tau_0 = 200 \text{ мксек}$. Информация о кратных, одиночных событиях и номерах счетчиков, зарегистрировавших нейтроны, в аналоговой форме фиксировалось многоканальным пишущим потенциометром.

Для уменьшения вероятности пробоев высокого напряжения изоляторы счетчиков были снабжены охранными кольцами. Для исключения электрических наводок все блоки установки тщательно экранировались и для их питания использовались сухие элементы и аккумуляторы. Привод самописца осуществлялся от часового механизма.

Эффективность регистрации одиночных нейтронов ϵ определялась при помощи препарата ^{242}Pu из соотношений чисел зарегистрированных двойных и тройных событий:

$$\frac{N(2)}{N(3)} = R \frac{\sum_{\nu \geq 2} P(\nu) \frac{\nu!}{2!(\nu-2)!} \epsilon^2 (1-\epsilon)^{\nu-2}}{\sum_{\nu \geq 3} P(\nu) \frac{\nu!}{3!(\nu-3)!} \epsilon^3 (1-\epsilon)^{\nu-3}}$$

где $P(\nu)$ - вероятности испускания ν нейтронов при спонтанном делении ^{242}Pu ; R - множитель, учитывающий просчеты событий из-за конечного разрешающего времени электронной схемы. Для центральной части установки было найдено $\epsilon = 19,0 \pm 1,0\%$. Зависимость эффективности регистрации нейтронов от удаленности источника от центра установки представлена на рис. 3. Найденное из этой зависимости среднее значение эффективности $\epsilon = 14 \pm 1\%$. При помощи калибровочных источников Po-Be и Pu-Be было установлено, что зависимость ϵ от энергии нейтронов можно пренебречь. В процессе измерений контроль стабильности работы аппаратуры осуществлялся при помощи препарата ^{242}Pu .

При поисках редких актов радиоактивного распада чувствительность применяемой методики удобно харак-

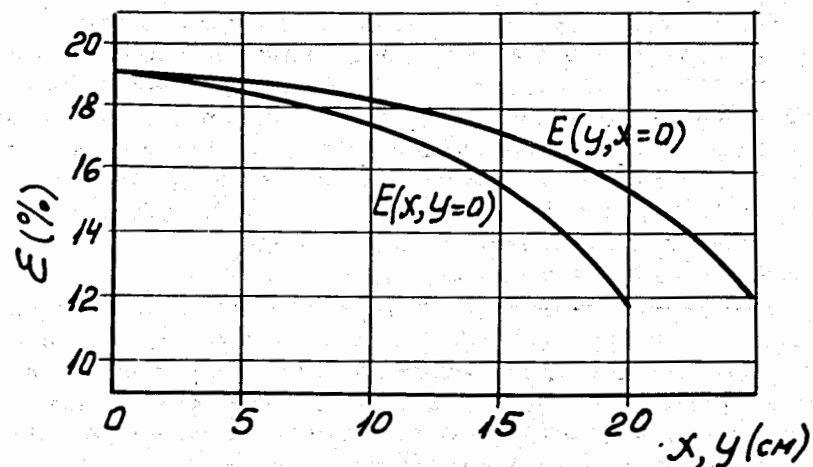


Рис. 3. Зависимость эффективности регистрации одиночных нейтронов ϵ от расстояния источника x, y до центра установки.

теризовать предельно достижимой величиной T/C , где T - период полураспада искомого излучателя, C - его концентрация. Чувствительность методики обнаружения актов спонтанного деления по множественному испусканию нейтронов определяется эффективностью регистрации кратных событий n , в значительной мере, фоном установки.

Эффективность регистрации кратных событий a зависит от среднего числа мгновенных нейтронов на акт деления $\bar{\nu}$. Никс^[20] и Шмидт и Мозель^[21] предполагают, что для спонтанного деления сверхтяжелых элементов $\bar{\nu}$ должно быть не менее восьми. Однако мы предполагали проведение поисков ядер, характеризующихся широким диапазоном значений $\bar{\nu}$. На рис. 4 представлена зависимость $a(\bar{\nu})$, полученная расчетным путем.

Основной вклад в фон детекторов множественного испускания нейтронов вносит взаимодействие космического излучения с материалом исследуемого образца и окружающими объектами /детали установки, стены помещения/. Для снижения фона от космических лучей все измерения выполнялись в соляной шахте на глубине

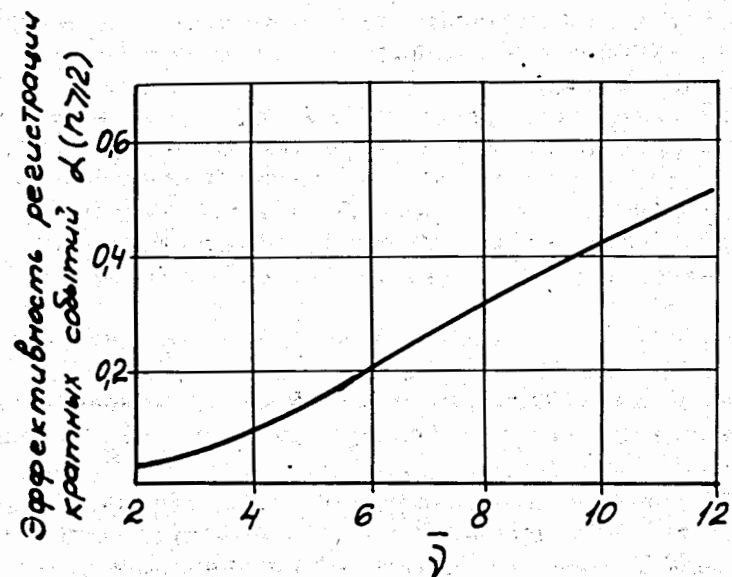


Рис. 4. Зависимость эффективности регистрации кратных событий a с $n \geq 2$ от величины

1100 метров водного эквивалента /м.в.э./. Дополнительно применялась система счетчиков Гейгера-Мюллера, располагавшаяся над установкой и включенная в схему антисовпадений с детектором нейтронов. Измерения фона продолжались 70 дней /образец в чувствительном объеме детектора отсутствовал/. Было зарегистрировано пять двойных и одно тройное событие. По-видимому, наличие незначительного фона кратных событий может быть объяснено тем, что установка была защищена гейгеровскими счетчиками только сверху /телесный угол 1,2 ср/. Измерения фона были повторно выполнены на установке, защищенной гейгеровскими счетчиками почти целиком /телесный угол защиты 10 ср/. За 60 суток не было зарегистрировано ни одного кратного события.

При изучении вклада в общий фон взаимодействия космического излучения с материалом образца^[1] было показано, что на глубине 1100 м.в.э. при измерениях

с аналогичным нейтронным детектором активности образцов из тяжелых металлов предел чувствительности обнаружения спонтанного деления соответствует $T/C = 5 \cdot 10^{24}$ лет. Фон одиночных импульсов, по-видимому, вызван радиоактивными загрязнениями стенок ^3He -счетчиков. Скорость счета одиночных импульсов периодически контролировалась и составляла $17,5 \pm 1$ импульсов/час. Предел чувствительности, определяемый случайными наложениями одиночных импульсов, соответствовал $T/C = 10^{27}$ лет.

Определенные трудности представляет определение фона от спонтанного деления урана в образцах. Если исходить из опубликованных данных о концентрациях урана в метеоритах /табл. 1/, то при $\nu = 2$ получаем предел $T/C = 8,5 \cdot 10^{15}$ лет / 10^{-8} г/г = $8,5 \cdot 10^{23}$ лет. При малой активности образцов получение надежной информации о $\bar{\nu}$ затруднительно, поэтому приходится рассматривать уран как возможный источник фона даже при попытках приписать наблюдавшуюся активность излучателям с большими значениями $\bar{\nu} > 2$. Однако в этом случае предел измеримого значения T/C , связанный с фоном спонтанного деления примеси урана, повышается до 10^{25} лет.

Результаты измерений активности метеоритов приведены в табл. 2.

Активность образцов метеоритов "Саратов" и "Алленде" /вес 3,8 кг/ измерялась на установке, описанной в работе /1/, а образцов метеоритов "Ефремовка" и "Алленде" /вес 22,5 кг/ - на установке, описанной в настоящей работе.

На рис. 5 представлена зависимость величины T/C от $\bar{\nu}$, рассчитанная на основании данных табл. 2. На этом же рисунке показаны пределы чувствительности методики, обусловленные спонтанным делением примеси урана и взаимодействием космического излучения с веществом метеоритов, рассчитанные по результатам измерений активности свинцового образца весом 100 кг. При вычислениях величины T/C учитывалось отсутствие событий с кратностью 4 и более. Полученные значения T/C лежат ниже кривых, ограничивающих чувствительность

Таблица 2

Образец	Вес (кг)	Время измерения сутки	Число зарегистрированных событий	
			$\Sigma N = 2$	$N = 3$
Саратов	5,2	94	4	1
Алленде	3,8	40	3	0
Алленде	22,5	55	12	1
Ефремовка	11,7	26	3	1
Ефремовка x	11,7	80	12	0

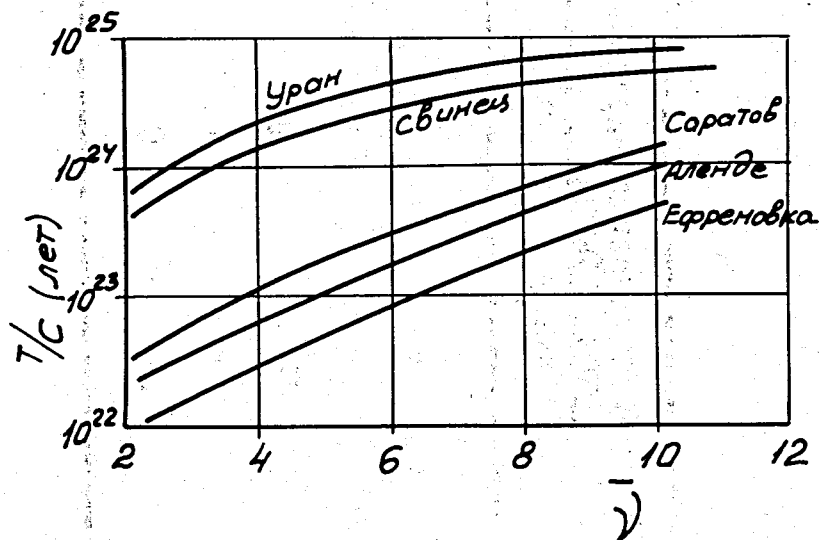


Рис. 5. Зависимость величины T/C от $\bar{\nu}$ и пределы чувствительности методики.

методики для всех значений $\bar{\nu}$, однако абсолютное значение зарегистрированной активности настолько мало, что заставляет более осторожно подходить к возможным источникам фона. Например, опубликованные данные о концентрации урана в метеоритах не исключают возможности существования в них участков со значительно большим содержанием урана. Такое предположение противоречит сумме имеющихся экспериментальных данных, т.к. для объяснения обнаруженной в настоящей работе множественной эмиссии нейтронов из образцов примитивных метеоритов необходимо предположить, что среднее содержание урана в них составляет примерно $5 \cdot 10^{-7}$ г/г. Однако исключить такую возможность полностью мы не можем. Это обстоятельство не позволяет сделать определенного заключения о наблюдении спонтанного деления сверхтяжелых элементов в метеоритах. Вместе с тем, интерпретация полученных результатов в соответствии с гипотезой о связи избытка тяжелых изотопов ксенона с делением гипотетических сверхтяжелых элементов представляет определенный интерес.

Обращает на себя внимание взаимное расположение кривых $T/C(\bar{\nu})$ для различных метеоритов. Количества избыточного ксенона в метеоритах "Саратов", "Алленде" и "Ефремовка" находятся в пропорциях 27 : 45 : 108. Найденные значения T/C образуют сходную пропорцию, что позволяет предположить, что концентрация избыточного ксенона отражает концентрацию гипотетического сверхтяжелого элемента.

Используя данные о содержании избыточного ксенона /табл. 1/ и значения величин T/C /рис. 5/, можно оценить период полураспада T и концентрацию C прародителя ксенона в метеоритах. Величина T может быть получена из соотношения

$$T \cdot \exp \left\{ 0,693 \frac{T_0}{T} - 1 \right\} = (T/C) \frac{A_{Xe}}{y} \cdot \frac{300}{136},$$

где T_0 - время, в течение которого вещество метеоритов удерживает ксенон, A_{Xe} - концентрация избыточного ксенона с массой 136, y - выход изотопа ^{136}Xe при делении сверхтяжелого ядра с массой 300.

На рис. 6 представлена зависимость $T(\bar{\nu})$ при различных предположениях о величине y . Эти значения получены в результате усреднения величин, найденных для различных метеоритов. Зависимость современной концентрации C от $\bar{\nu}$ представлена на рис. 7, при этом принималось значение $y = 5\%$.

Концентрация гипотетического сверхтяжелого изотопа в изученных нами образцах во время их образования, вычисленная на основании найденных значений T и C , оказывается близкой к $1/3 \cdot 10^{-11}$ г/г.

Недавно поступило сообщение Стоутона и др. о попытке наблюдения множественного испускания нейтронов из образцов метеорита "Алленде". Приведенные в работе [22] данные показывают, что чувствительность примененной установки позволяла регистрировать эффект спонтанного деления лишь на уровне $T/C < 10^{22}$ лет. Поэтому отрицательный результат, о котором сообщают Стоутон и др., не вызывает удивления.

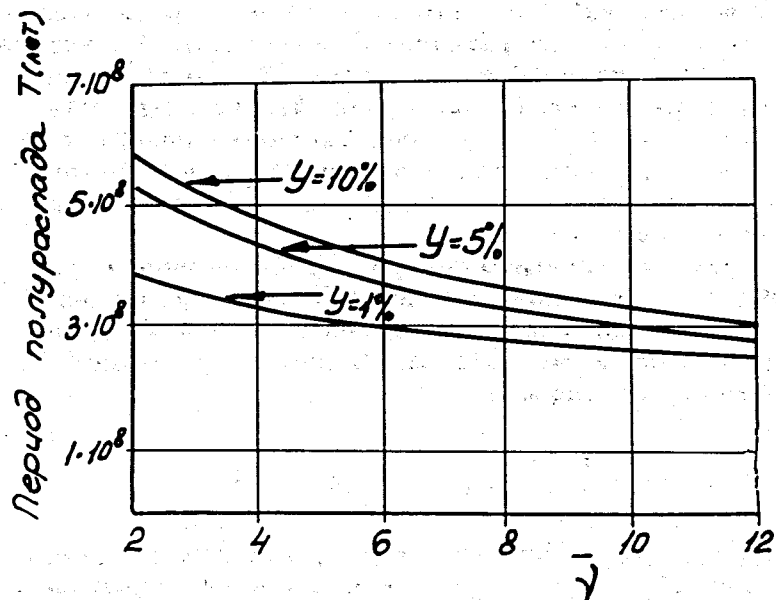


Рис. 6. Зависимость периода полураспада T гипотетического прародителя ксенона от $\bar{\nu}$ /усредненные значения/.

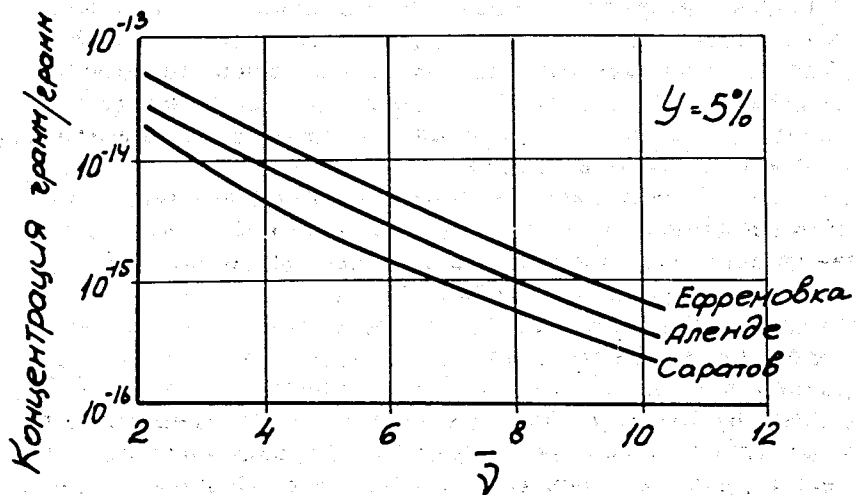


Рис. 7. Зависимость концентрации C гипотетического прародителя ксенона от $\bar{\nu}$ для различных метеоритов.

Авторы благодарны академику Г.Н.Флерову за постоянное внимание к работе и полезные советы; члену-корреспонденту АН ЧССР И.Зваре за участие в дискуссиях и ценные замечания.

Авторы выражают глубокую благодарность доктору Б.Мэйсону и доктору Р.С.Кларку за предоставление уникального образца для исследований.

Л.Г.Кваше и сотрудникам Комитета по метеоритам АН СССР авторы благодарны за помощь в подготовке образцов для измерений и обсуждение результатов.

М.С.Бирулеву авторы благодарны за помощь в наладке аппаратуры.

Литература

1. Г.Н.Флеров и др. Препринт ОИЯИ, Р6-7588, Дубна, 1973.
2. Handbook of Elemental Abundances in Meteorites, ed. by В.Мason, Series of Extraterrestrial Chemistry, v. I, New York, 1971.
3. Ю.А.Шуколюков, Л.К.Левский. "Геохимия и космохимия изотопов благородных газов", Москва, Атомиздат, 1972.
4. E.Anders and D.Heymann. Science, 164, 821 (1969).
5. E.C.Alexandr et al. Science, 172, 837 (1971).
6. А.К.Лаврухина. "Ядерные реакции в космических телах", М., Наука, 1972.
7. O.K.Manuel et al. Report to National Science Foundation, June, 15, 1970.
8. B.Srinivasan et al. Phys.Rev., 179, 1166 (1969).
9. O.K.Manuel, E.W.Hennecke, D.D.Sabu. Nature Phys.Sci., 240, 99 (1972).
10. E.Anders and J.W.Larimer. Science, 175, 981 (1972).
11. Ю.Т.Чубурков, Л.М.Лебедев. Препринт ОИЯИ, Р13-7249, Дубна.
12. O.L.Keller et al. J.Phys.Chem., 74, 1127 (1970).
13. D.N.Schramm. Nature, 233, 258 (1971).
14. D.N.Schramm, W.A.Fowler. Nature, 23, 103 (1971).
15. N.Bhandari et al. Nature, 230, 219 (1971).
16. M.Dakowski. Phys.Lett., 35B, 557 (1971).
17. M.N.Dao. Nucl.Phys., A140, 69 (1970).
18. G.N.Flerov et al. Proc. of Europ. Conf. Nucl. Aix-en-Provence 1972, v. II.
19. J.W.Boldeman. Доклад на Всесоюзной конференции по нейтронной физике. Киев, 1973.
20. J.R.Nix. Phys.Lett., 30B, 1 (1969).
21. H.W.Schmitt and U.Mosel. Nucl.Phys., A136, 1 (1972).
22. R.W.Stoughton et al. Nature. Phys. Sci., 246, 26 (1973).

Рукопись поступила в издательский отдел
24 июня 1974 года.