

П-27

4564 / 2-76

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



15/xi-76

P7 - 9973

В.П.Перелыгин, С.Г.Стеценко, Н.Бхандари

О ПРОИСХОЖДЕНИИ СЛЕДОВ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ  
В ВИТЛОКИТАХ ИЗ МЕТЕОРИТА БЬЮРБОЛЕ

1976

P7 - 9973

В.П.Перелыгин, С.Г.Стеценко, Н.Бхандари

О ПРОИСХОЖДЕНИИ СЛЕДОВ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ  
В ВИТЛОКИТАХ ИЗ МЕТЕОРИТА БЬЮРБОЛЕ

*Направлено в АЭ*

Поиск следов далеких трансурановых элементов в минералах из метеоритов, а также в лунных образцах может производиться двумя различными путями.

Первый - это поиск и идентификация следов от остатков тяжелых ядер первичного космического излучения с атомными номерами  $Z$  от 90 вплоть до 110-114 <sup>/1-3/</sup>. Такие ядра при замедлении создают в кристаллах протяженные зоны дефектов, длина которых пропорциональна их атомному номеру  $Z$  <sup>/2,3/</sup>. Однако в связи с тем, что тяжелые и сверхтяжелые ядра имеют относительно небольшие пробеги в веществе метеоритов <sup>/3,4/</sup> и относительно большую вероятность ядерного взаимодействия с тормозящей средой <sup>/5/</sup>, для проведения таких поисков необходимо выявлять участки, расположенные вблизи доатмосферной поверхности метеоритов, т.е. на глубине не более 5-8 см <sup>/3/</sup>.

Другое направление поиска - обнаружение и идентификация следов осколков от спонтанного деления далеких трансурановых элементов, синтезированных около 4,6 млрд. лет тому назад при образовании Солнечной системы <sup>/6,7/</sup>.

Условия космического пространства способствуют регистрации и сохранению следов спонтанного деления ядер со времени остывания родительских тел метеоритов, то есть в течение промежутков времени 4-4,5 млрд. лет <sup>/6,7/</sup>. Таким образом, минералы из метеоритов являются более подходящим объектом для поиска эффектов от спонтанного деления относительно короткоживущих трансурановых нуклидов, чем кристаллы и стекла земного происхождения, трековый возраст которых не превышает 2 млрд. лет <sup>/8,9/</sup>.

Настоящая работа по исследованию минералов из метеорита Бьюрболе была предпринята в связи с проведением программы исследований по поиску далеких трансурановых элементов в образцах земных минералов, руд, горных пород, а также в образцах из метеоритов. Детально эта программа представлена в обзорной работе Г.Н.Флерова<sup>/10/</sup>.

Метеорит Бьюрболе, падение которого наблюдалось весной 1899 года в Финляндии, относится к группе каменных метеоритов, а именно оливиново-гиперстеновых хондритов IV рода со сферическими хондрами. Полная масса метеорита около 330 кг<sup>/11/</sup>, при падении он раздробился на большое число фрагментов. Радиационный возраст метеорита Бьюрболе, определенный по космогенным изотопам в 1960 году Эберхардом и Гессом<sup>/12/</sup>, составляет от 8 до 11 млн. лет.

Как следует из анализа доатмосферных масс каменных метеоритов Сан-Северин, Кейс, Эллеген<sup>/13-15/</sup>, выполненного методом диэлектрических трековых детекторов, потери вещества каменных метеоритов при прохождении атмосферы Земли составляют от 20 до 70%.

Кроме того, для каменных метеоритов весьма существенна эрозия поверхности за счет воздействия частиц солнечного ветра и ударов микрометеоритов. Скорость этого процесса достигает 0,5-1 мм за 1 млн. лет<sup>/16/</sup>. С учетом этих фактов, можно заключить, что в каменных метеоритах, подвергшихся дроблению при прохождении атмосферы, трудно обнаружить участки с плотностью следов ядер группы Fe выше  $10^6$  на  $см^2$ .

В работе<sup>/17/</sup> показано, что наиболее подходящим индикатором глубины расположения образцов от доатмосферной поверхности являются оливины. Действительно, поскольку содержание урана в оливинах не превышает  $10^{-10} - 10^{-11}$  г/г, они практически не содержат фона следов от спонтанного деления. Это позволяет с большой степенью надежности определять вклад, обусловленный быстрыми космическими ядрами, в плотность треков на прилегающих к оливинам кристаллах полевых шпатов, пироксенов фосфатов и др.

Образцы метеорита Бьюрболе общим весом 15 г,

отобранные из одной локализации, измельчались в порошок с размерами частиц менее 1 мм.

Отбор прозрачных однородных кристаллов из порошка производился с помощью стереомикроскопа при увеличении 20-25X. Всего было отобрано около 200 прозрачных кристаллов размерами от 100 до 600 мкм. Эти кристаллы были смонтированы в эпоксидной смоле и отполированы.

Поскольку оливины являются одним из основных компонентов, входящих в состав хондр этого метеорита, травление смонтированных образцов производилось в специальном растворе Wll, предложенном в 1971 году Кришнасами и др.<sup>/18/</sup> для выявления треков в оливинах. Кристаллы вместе с травителем заключались в герметически замкнутый тефлоновый сосуд, что предотвращало изменение состава раствора в процессе химической обработки. Температура травящего раствора составляла 110°С, время травления - 6-8 час. Просмотр проявленных образцов производился под микроскопом при увеличении около 1400X.

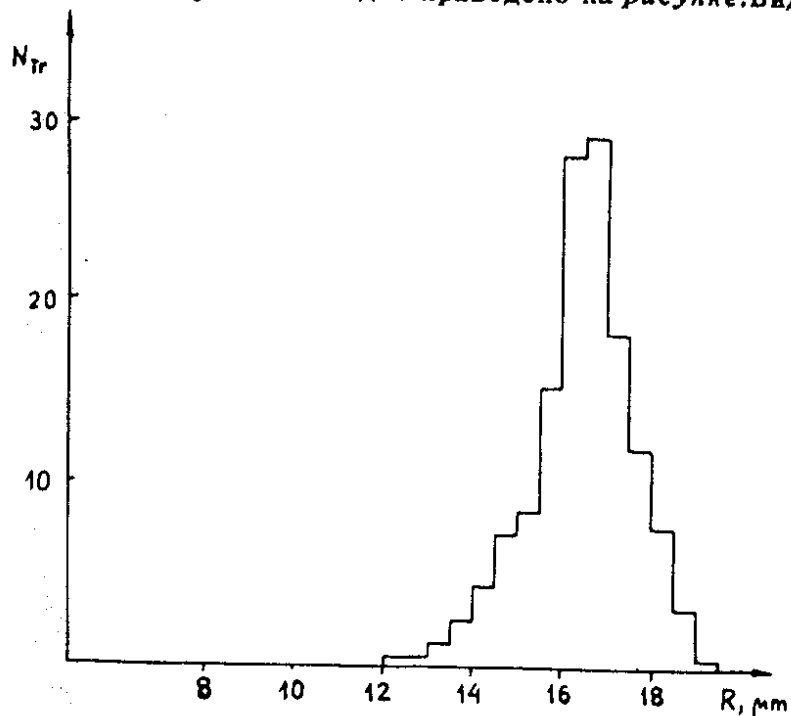
При этом в кристаллах оливина не удалось обнаружить следов от тяжелых космических ядер или осколков деления. Были выявлены лишь дефекты структуры оливина: капиллярные включения, дислокации, микротрещины. Верхняя граница плотности следов тяжелых заряженных частиц в оливинах определена равной  $\leq 5 \cdot 10^3$  на  $см^2$ . Исходя из известного космического возраста метеорита Бьюрболе и полученной границы плотности следов ядер группы Fe, можно заключить, что глубина расположения исследуемого образца составляла 20-25 см от доатмосферной поверхности этого метеорита<sup>/4/</sup>.

Однако среди образцов было обнаружено четыре прозрачных кристалла, содержащих  $/2-5/ \cdot 10^7$  треков на  $см^2$  поверхности. Треки в этих кристаллах представляли собой пустотелые цилиндрические каналы с плоскопараллельными стенками. За счет исключительно высокой скорости травления вдоль следа  $V_{тр}$  в объеме кристалла на треках, берущих начало с поверхности, выявились цепочки вторичных треков (TINT)<sup>/4/</sup>.

Из литературы известно, что травитель, предложен-

ный в работе /18/, выявляет треки тяжелых заряженных частиц также и в минералах типа фосфатов /6/.

Идентификация этих кристаллов и измерение содержания их основных компонентов производились на рентгеновском микроанализаторе УХА-50. Было установлено, что основу этих кристаллов составляют кальций и фосфор; имеется также примесь магния /около 5%/ . Этот анализ позволил заключить, что мы имеем дело с кристаллами витлокита  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ , отличающегося относительно высоким содержанием Mg. Большая плотность треков на поверхности витлокитов препятствовала просмотру. Поэтому для измерения спектров длин следов верхний слой кристаллов толщиной 15-20 мкм устранялся. Измерения треков производились при увеличении около 2200 X. Определялись длины и глубины треков, заключенных в объеме кристалла. Распределение длин измеренных следов приведено на рисунке. Видно,



Распределение длин следов осколков спонтанного деления в витлоките из метеорита Бьюрболе.

что в спектре длин лишь одна группа треков имеет среднюю длину  $16,7 \pm 0,8$  мкм. Распределение длин на рисунке имеет форму, подобную спектру длин треков осколков деления в авгитах из метеорита Ангра дос Рейс /20/. Этот результат в сочетании с отсутствием заметной плотности треков на оливинах из того же участка метеорита Бьюрболе позволяет заключить, что обнаруженные в витлокитах треки обусловлены спонтанным делением урана и более тяжелых трансурановых элементов.

Нами были проведены измерения содержания урана в кристаллах витлокита. С этой целью кристаллы в плотном контакте с пленкой из политерефталата /лавсана/ облучались потоком тепловых нейтронов  $(1-2) \cdot 10^{16}$  нейтр./см<sup>2</sup>. Индикатором потока нейтронов служили тонкие слои естественного урана  $\sim 10^{-7}$  г/см<sup>2</sup>, нанесенные методом катодного распыления на подложку и находящиеся в контакте с лавсановым детектором.

Содержание урана в этих кристаллах было определено равным  $0,2-0,4 \cdot 10^{-6}$  г/г. Таким образом, спонтанное деление урана могло обусловить не более 5-10% от наблюдаемого числа треков. Очевидно, что основная часть эффекта обусловлена спонтанным делением трансурановых элементов. Для определения верхней границы вероятности тройного деления трансурановых ядер, содержащихся в витлокитах, был проведен просмотр четырех проявленных кристаллов. Производился поиск трехлучевых событий с треками длиной свыше 2 мкм и углами  $\phi$  между ними  $95^\circ \leq \phi \leq 170^\circ$ , а также подсчет двухлучевых событий /одиночные прямые треки длиной свыше 12 мкм/. На 3700 треков от деления на два осколка не было обнаружено ни одного события деления на три осколка сравнимой массы. Таким образом, верхняя граница вероятности тройного деления по отношению к двойному составляет  $P_{3f}/P_{2f} \leq 2,7 \cdot 10^{-4}$ .

Рассмотрим более детально вопрос о происхождении следов осколков деления в фосфатах из метеорита Бьюрболе. В витлокитах из этого метеорита, как и в целом ряде других минералов из метеоритов и с поверхности Луны, обнаружена большая плотность следов осколков спонтанного деления, которая не может быть объяснена

спонтанным делением изотопа  $^{238}\text{U}$  /20-22/. Большинство авторов относит этот эффект к спонтанному делению наиболее стабильного известного трансуранового ядра  $^{244}\text{Pu}$ , имеющего период полураспада  $8,2 \cdot 10^7$  лет /24/. Однако имеются и другие гипотезы, объясняющие происхождение таких треков. Так, Рао и Гопалан /23/, ссылаясь на аномалии в относительной концентрации тяжелых изотопов ксенона, выдвигают предположение, что в некоторых образцах заметный вклад в наблюдаемую плотность треков дает спонтанное деление изотопа кюрия  $^{248}\text{Cf}$ .

В работе Прайса и Флейшера /24/ подробно рассмотрен вопрос о другом возможном источнике наблюдаемого эффекта - спонтанном делении относительно стабильного трансуранового элемента с атомным номером  $Z$  около 114 /или 126/, имеющего замкнутую нейтронную оболочку  $N=186$ . Необходимо отметить, что в целом ряде метеоритов, например в углистых хондритах, наблюдается аномально высокая концентрация тяжелого изотопа ксенона  $^{136}\text{Xe}$ . Как показано в работах Андерса и Хеймана /25/, а также Даковского /26/, эта аномалия может быть обусловлена спонтанным делением ядер сверхтяжелых элементов. Однако обычно анализ на содержание аномального ксенона производится для всего метеорита в целом или для наиболее представительных фракций метеоритов. В кристаллах типа фосфатов, пироксенов полевых шпатов такой анализ часто крайне затруднен из-за относительно малых количеств таких минералов в метеоритах.

В связи с этим каждый образец с избыточной плотностью следов осколков деления должен более подробно анализироваться на происхождение этих треков. В предыдущих работах /24, 27/ предполагалось, что такой анализ должен опираться на различие в пробегах осколков деления урана-плутония и 114-го элемента. Это различие, по мнению авторов работы /24/, должно составлять 15-20%. Кроме того, предполагалось, что вероятность спонтанного деления ядра с  $Z$  около 114 на три осколка сравнимой массы должна быть существенно выше, чем ядер  $^{238}\text{U}$ ,  $^{252}\text{Cf}$ , где эта вероятность составляет

около  $10^{-6}$  по отношению к двойному делению. Однако проведенное в работе /28/ детальное сравнение трайминых длин следов осколков от спонтанного деления  $^{244}\text{Cm}$  и от составных ядер с  $Z=110, 112$ , образованных при взаимодействии ионов  $^{40}\text{Ar}$ ,  $^{40}\text{Ca}$  с  $^{238}\text{U}$ , позволило заключить, что средние длины следов осколков деления ядер с  $Z=92-96$  и  $Z=110, 112$  практически совпадают. Действительно, кинетические энергии осколков спонтанного деления этих двух групп ядер, выраженные в *МэВ/нуклон*, совпадают в пределах 5-10%. Согласно соотношениям пробег-энергия, представленным в работе Норсклиффа и Шиллинга /29/, осколки от деления ядер группы урана-плутония и гипотетических сверхтяжелых элементов, имеющие одинаковые энергии в *МэВ/нукл.*, должны иметь один и тот же пробег в веществе. Далее, при рассмотрении вопроса об отношении вероятности тройного деления далеких трансурановых элементов необходимо учитывать, что эта вероятность быстро падает с уменьшением энергии составного ядра. Наши предыдущие исследования показывают, что с уменьшением энергии бомбардирующих частиц от 300 до 230 *МэВ* /реакция  $^{238}\text{U} + ^{40}\text{Ca}$ / отношение вероятности тройного деления к двойному уменьшается в 10 раз /30/. Простая экстраполяция, проведенная в работе /28/, показывает, что для ядер с атомным номером  $Z=110-114$ , находящихся в основном состоянии, вероятность  $P_{3f}/P_{2f} \leq 10^{-4}$ . Таким образом, оба аргумента, приведенные в работе /24/, не находят достаточного экспериментального основания, по крайней мере для области  $Z=110 \div 114$ , и вопрос о происхождении треков спонтанного деления в минералах из метеоритов требует дальнейшего изучения.

Необходимо отметить также еще одну возможность идентификации треков осколков деления, появившуюся недавно в связи с проведением исследований по отжигу следов ионов  $\text{Kr}$ ,  $\text{Xe}$  в кристаллах /31/. Как показано в работах /3, 31/, в кристаллах с относительно высоким порогом выявления треков /оливин, диоксид и др./ процесс избирательного отжига приводит практически к полному устранению треков ионов  $\text{Kr}$ , в то время как низкоэнергетическая часть трека  $\text{Xe}$  сокращается всего

на 1,5-2 мкм. Такая процедура может быть применена к кристаллам, содержащим следы от спонтанного деления трансураниевых элементов. В этом случае в спектре длин следов можно будет в принципе различить две группы треков, обусловленных делением ядер урана и плутония /сокращение средних длин следов в 2-3 раза/ и делением гипотетических трансураниевых элементов /сокращение длины на 20-30 %/. Методика требует проведения детальных исследований процессов регрессии треков от нонов Кг, Хе, осколков деления <sup>235</sup>Утепловыми нейтронами. В частности, для метеорита Бьюрболе необходимо прежде всего выделить по крайней мере 10-12 кристаллов витлокита с размерами свыше 100 мкм. Такая процедура может быть проведена и с образцами минералов из метеоритов Сан-Северин, Ангра дос Рейс, Толука, Одесса, Эль Тако, в которых ранее была найдена большая избыточная плотность следов осколков спонтанного деления с возрастом до 4,5 млрд. лет.

В заключение авторы выражают глубокую признательность академику Г.Н.Флерову за постоянное внимание к работе и полезные советы. Авторы признательны также Ш.Б.Внику за представленные образцы метеорита Бьюрболе, В.К.Гаранину и Т.П.Кудрявцевой за проведенные ими анализы минералов из метеорита Бьюрболе.

#### Литература

1. M.Maurette, P.Thro, R.M.Walker, R.Web-bink. Meteorite Res., 12, 286 (1968).
2. P.B.Price, R.Rajan, E.K.Shirk. Proc. of the II-nd Lunar Sci. Conf., v.3, 2625, MIT Press (1971).
3. О.Отгонсурен, В.П.Перелыгин. Сообщение ОИЯИ, P7-7406, Дубна, 1973; АЭ, 37, 164 /1974/.
4. D.Lal. Space Sci. Rev., 14, 3 (1972).
5. R.R.Daniel, N.Durgaprasad. Nuovo Cim., 23, Suppl. Serie 10, 82 (1962).

6. R.L.Fleischer, P.B.Price, R.M.Walker.. Nuclear Tracks in Solids, Univ. of California Press, Berkley (1975).
7. R.L.Fleischer, P.B.Price, R.M.Walker. Geoch. Cosmoch. Acta, 32, 21 (1968).
8. Х.Абдуллаев, С.К.Горбачев, А.Капусцки, В.П.Перелыгин, С.П.Третьякова. Сообщение ОИЯИ, P7-2961, Дубна, 1966.
9. D.Miller. Earth and Planetary Sci. Lett., 4, 379 (1968).
10. G.N.Flerov. Intern. Conf. on Reaction between Complex Nuclei. Nashville, USA, 10-14 Juny 1974, ed. ORNL (1974).
11. M.H.Hey. Catalogue of Meteorites, Ed. British Museum, London, p.57 (1966).
12. P.Eberhardt, D.C.Hess. Astrophysical J. 131, 38 (1960).
13. Y.Contelaube, P.Pellas. Origin and Distribution of elements, Ed. L.Ahrens, Pergamon Press, p.479 (1968).
14. Y.C.Lorin, G.Pouplau. Meteoritics, 8, 410 (1973).
15. P.Pellas, A.Ducater, Y.L.Berdot. Meteoritics, 8, 418 (1973).
16. P.B.Price, R.S.Rajan, A.S.Tamhane. J.Geophys. Res., 72, 1377 (1967).
17. В.П.Перелыгин, Ш.Б.Вник, О.Отгонсурен. Препринт ОИЯИ, P13-8359, Дубна, 1974.
18. S.Krishnaswami, D.Lal, N.Prabhu, A.S.Tamhane. Science, 174, 287 (1971).
19. D.Lal, R.S.Rajan, A.S.Tamhane. Nature, 221, 33 (1969).
20. N.Bhandari, S.Bhat, D.Lal, G.Rajagopalan, A.S.Tamhane, V.S.Venkavarada. Nature, 234, 540 (1971).
21. Y.Cantelaube, M.Maurette, P.Pellas. Radioactive Dating and Low Level Counting, IAEA, Vienna, p.213 (1967).

22. G.Crozaz, R.Drosd, H.Grat, C.M.Hohenbery, D.Ragan, C.Ralston, M.Zeitz, J.Shirk, R.M.Walker, Y.Zimmerman. Proc. of the III-rd Lunar Sci. Conf., v.2, p.1623, MIT Press (1972).
23. M.N.Rao, K.Gopalan. Nature, 245, 304 (1973).
24. P.B.Price, R.L.Fleischer. Phys.Lett., 30B, 246 (1969).
25. E.Anders, D.Heymann. Science, 164, 281 (1969).
26. M.Dakowski. Earth Planet. Sci. Lett., 6, 152 (1969).
27. N.Bhandari, S.G.Bhat, D.Lal, G.Bajjagopalan, A.S.Tamhane, V.S.Venkavarada. Nature, 230, 219 (1971).
28. О.Отгонсурен, В.П.Перельгин, С.П.Третьякова, Ю.А.Виноградов. АЭ, 32, 344 /1972/.
29. L.C.Northcliffe, R.F.Shilling. Nuclear Data Tables, A7, 233 (1970).
30. V.P.Perelygin, N.H.Shadieva, S.P.Tretiakova, R.Boos, R.Brandt. Nucl., Phys., A127, 577 (1969).
31. Г.Н.Флеров, О.Отгонсурен, В.П.Перельгин. Изв. АН СССР, сер.физ., XXIX, 2, 388 /1975/.

Рукопись поступила в издательский отдел  
14 июля 1976 года.