

О происхождении следов осколков деления в свинцовых стеклах

Г. Н. ФЛЕРОВ, В. П. ПЕРЕЛЫГИН, О. ОТГОНСУРЭН

УДК 546.799:539.1.074.5

Проблема существования новой области относительно стабильных сверхтяжелых трансурановых элементов привлекает внимание большого круга исследователей, как теоретиков, так и экспериментаторов. Однако выполненные до последнего времени опыты по синтезу, а также по 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). В работах [1—3] дан подробный обзор теоретических и экспериментальных исследований, посвященных этой проблеме.

Цель настоящей работы — выяснить происхождение следов тяжелых заряженных частиц, обнаруженных нами в 1968 г. при травлении защитных свинцовых стекол и хрусталя XIX в. [4]. Аналогичный результат был получен в работе [5], где наряду с большим числом свинцовых стекол исследовались образцы, содержащие висмут, вольфрам и ртуть. Эффект, который наблюдался на некоторых образцах свинцовых стекол, был равен 2—10 делениям на 1 г свинца в год.

Как показали контрольные опыты, выполненные методом активационного анализа [4—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 компонентой космического излучения, приведенные в работе [4], дали величину менее двух делений на 1 г свинца в год.

Эти оценки основывались на экстраполяции результатов опытов по определению вероятности деления ядер висмута и тория на высоте 13—20 км и около 4 км (Памир) [7], а также на данных о вероятности деления тория на уровне моря, полученных для широты Москвы [8]. При проведении количественных оценок учитывался тот факт, что сечение деления ядер свинца быстрыми нейтронами в области энергий до 200 Мэв по крайней мере в два раза меньше, чем сечение деления висмута [9], и что нуклонная компонента испытывает поглощение в пере-

крытиях и стенах зданий. Кроме того, предполагалось, что при погружении в атмосферу до уровня моря спектр нуклонной компоненты смещается в сторону меньших энергий [7] и что при переходе от широты 38° (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, что фон, обусловленный космическим излучением, составляет, по-видимому, малую долю от 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 пропорциональными счетчиками, в которых для свинцовых стекол было получено от двух до четырех делений на 1 г свинца в год [11]. В то же время в опытах со счетчиками, загруженными разделенным изотопом свинца Pb^{208} , за 160 суток экспозиции было зарегистрировано всего четыре импульса, что соответствовало примерно 0,5 деления на 1 г в год.

Однако результаты, полученные в работах [4, 5, 11], не нашли надежного подтверждения в опытах по регистрации актов спонтанного деления, выполненных с помощью нейтронных He^3 -детекторов [2]. Эксперименты проводились под землей на глубине около 400 м, что исключало вклад от ядерноактивной 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 5—10. Согласно оценкам, приведенным в работе [2], эффект наблюдаемый 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.

Контрольные опыты по прямому наблюдению осколков спонтанного деления в свинцовых стеклах

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

Поскольку известные методики регистрации редких событий деления ядер очень трудоемки [12] или не обеспечивают однозначной идентификации осколков деления ядер [13], нами специально была разработана малофоновая методика, основанная на регистрации совпадений следов осколков в двух слоях полимерной пленки.

Образец измельчали в тонкий порошок на шаровой мельнице, затем его наносили на лавсановую пленку (толщина слоя ~ 2 мг/см²), служившую одновременно детектором осколков деления. К этому препарату прикладывались вплотную две тонкие пленки пластика. Слой пластика, прилежавший к препарату, имел толщину около 6 мк, что существенно меньше среднего пробега осколков деления в этом пластике (16—18 мк); толщина второго слоя была около 70 мк. Площадь пленки с исследуемым препаратом была от 1 до 4 м², время экспозиции составляло около 400 суток.

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

После экспозиции пластиковые детекторы помещались в 25%-ный раствор NaOH, травление проводилось в течение 40—50 ч при температуре 20° С. Поиски следов осколков деления осуществлялись методом искрового пробоя тонкого пластика. Для этого его помещали на полированную металлическую поверхность и покрывали сверху слоем алюминиевой фольги. Между двумя металлическими поверхностями создавалась разность потенциалов 500—900 в.

Пробой происходил вдоль сквозных отверстий, образованных при травлении следов осколков деления. Поскольку травление дефектов поверхности лавсана также приводят к пробоям

тонкого слоя пластика, для однозначной идентификации следов осколков деления просматривался второй слой в области, непосредственно прилежавшей к месту пробоя. Число фоновых событий не превышало двух-четырех на 1 дм², такая процедура позволяла увеличить скорость поисков редких событий деления ядер в сотни раз по сравнению с обычным микроскопическим просмотром пленок по площади.

На 6 м² пленки, экспонированной со свинцовыми стеклами, методом совпадений было зарегистрировано три осколка вместо 25 осколков деления ядер, ожидавшихся исходя из 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 составить один-два следа. Это обстоятельство поставило под сомнение возможность объяснения эффекта, который наблюдался в свинцовых стеклах, спонтанным делением далеких трансурановых элементов.

Потребовался дополнительный тщательный анализ возможных причин фона в стеклах.

Происхождение следов заряженных частиц, обнаруженных в свинцовых стеклах

Одним из источников фона в стеклах наряду с делением 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 работе [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 активационного 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 являться концентрации Cm²⁴⁴ до 10⁻¹⁴ г/г и Cf²⁵² до 10⁻²⁰ г/г.

В настоящей работе использовались образцы, представляющие собой монолитные бруски свинцового стекла, изготовленные до появления техногенных спонтанно делящихся ядер. Применявшаяся процедура травления позволяла выявлять следы осколков деления в объеме стекла. Следует отметить, что проведение этих опытов предъявляет определенные требования

также и к чистоте травящих растворов. Однако, как показывают простые оценки, опасные значения концентрации юрия и калифорния в плавиковой кислоте или щелочи NaOH при травлении в течение 20 мин составляют соответственно 10^{-6} и 10^{-12} г/г. Такие загрязнения химических реактивов 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.

Для детального учета этих эффектов необходимо точно знать условия хранения образцов свинцовых стекол.

Для определения чувствительности к тяжелым частицам образцы свинцовых и силикатных стекол облучались перпендикулярно к поверхности ионами Ne^{22} , P^{31} , S^{32} , Ar^{40} , Zn^{66} , а также осколками деления Sm^{244} . Энергия бомбардирующих частиц изменялась в широких пределах. Образцы проявлялись в одинаковых условиях, затем измерялись диаметры следов бомбардирующих частиц. Результаты этих измерений представлены на рис. 1. Как следует из рис. 1, разные стекла имеют различный порог регистрации заряженных частиц. Кривые рис. 1 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 может регистрировать ионы, начиная с Ne^{22} . Однако даже следы ионов серы заметно отличаются по размерам от следов цинка (рис. 2). Аналогичная картина наблюдалась для хрустала начала XIX в. и рентгеновского защитного стекла, но с увеличением концентрации свинца порог регистрации смещается в сторону больших удельных потерь энергии бомбардирующих частиц (см. рис. 1). Наименьшей чувствительностью обладает образец синтетического стекла, в котором диаметры следов ионов цинка существенно меньше диаметров следов оскол-

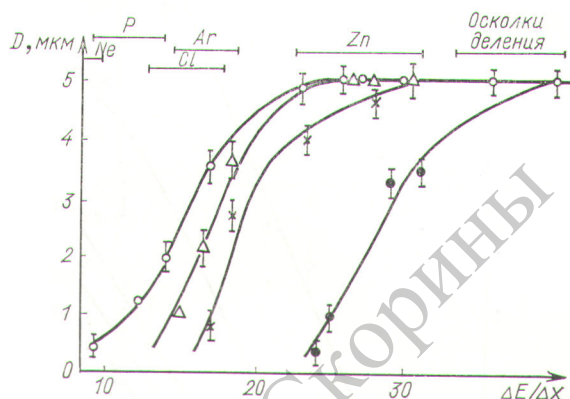


Рис. 1. Зависимость диаметров следов от ионизации, создаваемой ионами Ne^{22} , P^{32} , Cl^{35} , Ar^{40} , Zn^{66} и осколками деления Sm^{244} , в различных стеклах:

○ — силикатное стекло; △ — хрусталь XIX в.; × — свинцовое защитное стекло; ● — синтетическое стекло.

ков 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 протонов с энергией 5,5 Гэв с ураном не превышает 10^{-27} см².

Поскольку основная доля вторичных нуклонов, генерируемых космическим излучением на уровне моря, имеет энергию не выше нескольких сотен мегаэлектронвольт, 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.

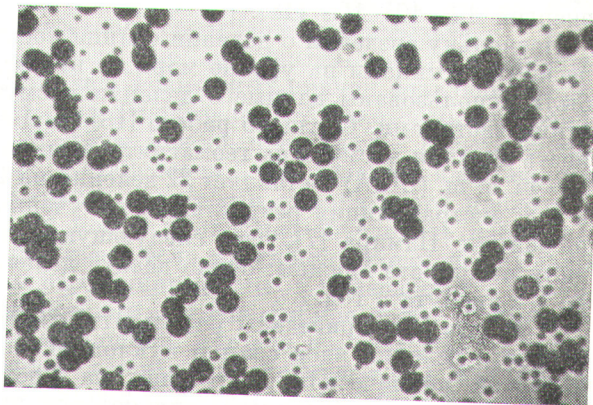


Рис. 2. Следы ионов цинка и серы на силикатном стекле.

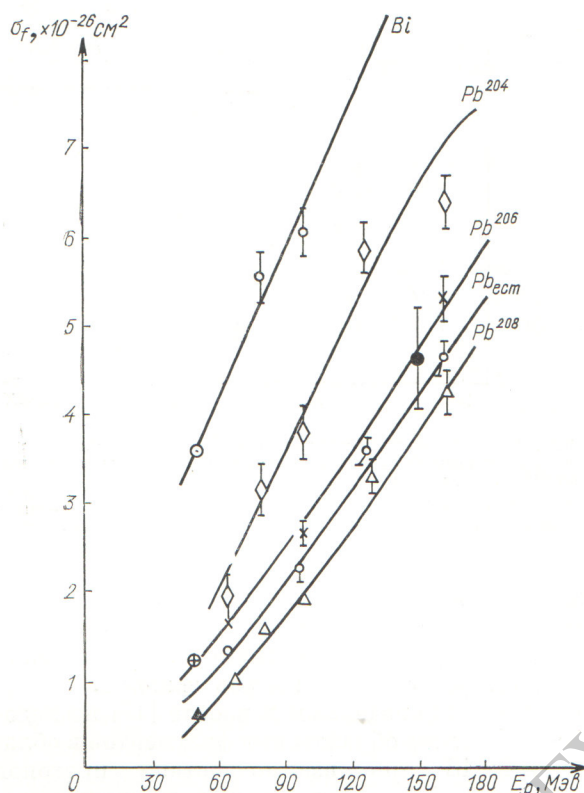


Рис. 3. Энергетические зависимости сечений деления ядер Pb^{204} , Pb^{206} , Pb^{208} , естественного свинца и висмута протонами.

○, ⊕, ▲ — данные работы [16], для энергии протонов 49,6 Мэв; ● — данные работы [9].

Рассмотрим 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 $10-10^4$ Мэв [18].

Поскольку сведений о делении свинца космическими частицами на уровне моря не имеется, были использованы данные о делении висмута этими частицами. Согласно работе [18], вероятность деления висмута на геомагнитной широте $\lambda = 44^\circ$ с. ш. (США) составляет 22 деления на 1 г в год; экстраполяция результатов, полученных на широте Памира [7], дает следующую величину на широте Москвы: около девяти делений на 1 г висмута в год.

В работе [14] приведены результаты расчета скорости деления ядер свинца нуклонной компонентой космического излучения на уровне моря. Геомагнитная широта, для которой проведен расчет, не указывается. Согласно работе

[14], скорость деления свинца нуклонной компонентой составляет 10—12 делений на 1 г в год.

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

Нами были проведены опыты по определению сечений деления естественного свинца и его изотопов Pb^{204} , Pb^{206} и Pb^{208} , а также висмута протонами в области энергий 60—160 Мэв. В этих опытах использовались мишени из $PbSO_4$ толщиной 10 мг/см², которая много больше пробега осколков деления. В качестве детектора применялись тонкие слои слюды. Мониторирование пучка протонов осуществлялось 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 $R_{эфф}$ для $PbSO_4$ [6]; статистическая ошибка составляла $\pm 4\%$ для каждой точки. Данные рис. 3 для сечений деления Pb^{206} и Pb^{208} хорошо согласуются со значениями сечений деления этих изотопов при энергии протонов 49,6 Мэв, полученных в работе [20]. Таким образом, учитывая форму спектра нуклонной компоненты космического излучения [18], можно с уверенностью сказать, что наибольший вклад в наблюдаемый эффект вносит деление свинца нуклонами при энергиях 50—200 Мэв.

Кроме того, можно заключить, что вероятность деления изотопа Pb^{208} протонами примерно в полтора — два раза ниже вероятности деления ядер естественного свинца.

В связи с невозможностью провести достаточно надежные количественные оценки были поставлены прямые опыты по определению

вероятности деления свинца космическими частицами ($\lambda = 56^\circ$ с. ш.)

С этой целью несколько квадратных метров фольги из свинца естественного изотопного состава были помещены в контакт с двойными слоями пластиковых детекторов. Затем они экспонировались без поглотителя под открытым небом в течение 92 суток. На площади 1 м^2 пластика было зарегистрировано 36 следов деления свинца быстрыми частицами. С учетом эффективно работающего слоя [6] вероятность деления ядер свинца составила 15 ± 4 деления на 1 г в год, что соответствует кажущемуся периоду спонтанного деления естественного свинца около $1,4 \cdot 10^{20}$ 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 пять осколков деления, что примерно соответствует двум делениям на 1 г свинца в год.

Отметим, что делением ядер свинца нуклонами космического излучения можно объяснить также эффект, наблюдаемый в первых экспериментах на лавсане, экспонированном в контакте со слоем свинца под землей в течение 100 суток [4]. Действительно, экспозиции под землей предшествовали процедура монтажа сборки и ее транспортировка к месту хранения; после экспозиции образец доставлялся обратно и демонтировался. При этом образец находился в здании, толщина бетонных перекрытий которого составляет менее 30 см .

Поскольку указанные операции занимали около трех суток, деление ядер свинца в сборке обуславливало наблюдаемый эффект — $1,0 \pm 0,5$ деления на 1 г в год.

Нами были предприняты попытки произвести дискриминацию следов осколков от деления ядер свинца быстрыми протонами ($120\text{—}160 \text{ Мэв}$) и от деления урана нейтронами. В этих опытах были измерены распределения диаметров следов осколков на хрустале XIX в. и образцах защитных стекол.

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

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

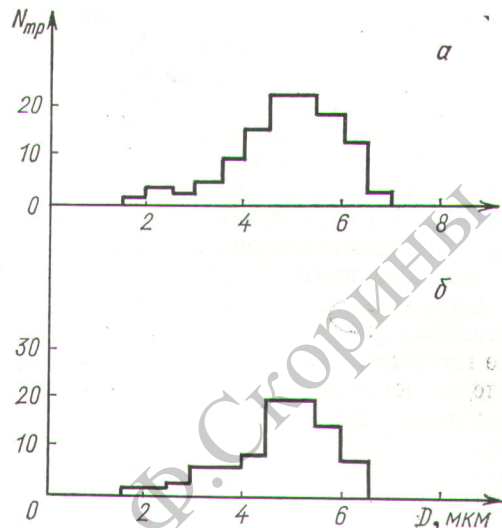


Рис. 4. Распределение диаметров следов деления U^{235} тепловыми нейтронами (а) и свинца протонами с энергией 120 Мэв (б) в рентгеновском защитном стекле.

в свинцовом стекле, облученном параллельно поверхности протонами с энергией 120 Мэв , показали, что эффект отдачи в виде V-образных следов наблюдается не более чем в 4% случаев. Таким образом, можно сделать вывод, что следы осколков деления свинца быстрыми нуклонами ни по диаметру, ни по форме не отличаются от следов 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 является гипотеза о спонтанном делении ядер неизвестного сверхтяжелого элемента.

Проведенные дополнительные эксперименты по анализу возможных причин появления фоновых следов показали, что некоторыми источниками фона можно пренебречь. Вместе с тем было установлено, что деление ядер свинца быстрыми нуклонами космического происхождения может полностью обусловить наблюдаемый эффект, если эти стекла находились на большом расстоянии от стен в помещениях с толщиной бетонных перекрытий не более 10 см , т. е. такая толщина, которая не обеспечивает достаточной защиты от космического излучения.

В связи с тем что условия хранения исследованных нами свинцовых стекол неизвестны,

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 том случае, когда известно, что со времени изготовления они хранились под толстым слоем перекрытий ($d \geq 200-300 \text{ г/см}^2$).

Показано, что в стеклах, не содержащих тяжелых элементов, космическое излучение не приводит к появлению фона, имитирующего следы осколков деления. Это обстоятельство позволяет использовать для поисков далеких трансурановых элементов большое число образцов из синтетических и природных стекол.

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. Попенко за постоянную помощь при проведении настоящей работы и полезные обсуждения, В. И. Кудрявцеву, Г. С. Ходакову, А. Г. Пилькову за помощь в освоении методик измельчения твердых веществ и нанесения 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.

Поступила в редакцию 14/VI 1972 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Г. Н. Флеров. Материалы Международной конференции по физике тяжелых ионов. (Дубна, февраль 1971 г.) Дубна, Изд. ОИЯИ, 1971, стр. 43.
2. Г. Н. Флеров и др. Там же, стр. 61.
3. Г. Н. Флеров, И. Звара. Сообщение ОИЯИ Д7-6013. Дубна, 1971.
4. Г. Н. Флеров, В. П. Перелыгин. «Атомная энергия», **26**, 520 (1969).
5. Э. Цесьляк. Сообщение ОИЯИ Р15-4738. Дубна, 1969.
6. Х. Абдуллаев и др. «Приборы и техника эксперимента», № 2, стр. 78 (1968).
7. Г. Н. Флеров и др. ЖЭТФ, **36**, 727 (1959).
8. Г. Н. Флеров и др. «Докл. АН СССР», **118**, 69 (1958).
9. В. А. Коньшин, Е. С. Матусевич, В. И. Регушевский. «Ядерная физика», **2**, 682 (1965).
10. М. Кодاما. J. Phys. Soc. Japan, **17**, Suppl. A-11, 441 (1962).
11. Г. Н. Флеров и др. Сообщение ОИЯИ Д6-4554. Дубна, 1969 г.
12. А. Бапусчик и др. «Приборы и техника эксперимента», № 1, 43 (1968).
13. N. Lark. Nucl. Instr. Meth., **67**, 137 (1969).
14. Г. В. Горшков, В. А. Зябкин, Р. М. Яковлев. «Ядерная физика», **13**, 491 (1971).
15. О. Отгонсурен и др. Сообщение ОИЯИ Р7-5814. Дубна, 1971.
16. A. Marinov. Rutherford Laboratory Preprint, RPP/NS/7, 1971.
17. A. Poskanzer. Phys. Rev., **С3**, 882 (1971).
18. N. Hess et al. Phys. Rev., **116**, 445 (1959).
19. В. И. Гольданский, В. С. Пенткина, Э. З. Тарумов. ЖЭТФ, **29**, 778 (1965).
20. Snodai-Joopari, Report UCRL-16489 (1966).

Уважаемые читатели!

Если Вы хотите приобрести отдельные номера журнала «Атомная энергия», извещайте нас об этом за 1,5—2 месяца до выхода интересующего Вас номера в свет (декабрьский номер заказывайте в октябре, январский — в ноябре и т. д.). Заявки шлите по адресу: 101876, Москва, Центр, ул. Кирова, 18, редакция журнала «Атомная энергия».