

ПОИСКИ ДАЛЕКИХ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ЖЕЛЕЗО-МАРГАНЦЕВЫХ КОНКРЕЦИЯХ

Search for Remote Transuranium Elements in Iron-Manganese Nodules

Г. Н. Флеров

Объединенный институт ядерных исследований, Лаборатория ядерных реакций, Дубна*

(Поступила в редакцию 12 марта 1970 г.)

Производились поиски эффекта от деления далеких трансураниевых элементов в железо-марганцевых конкрециях, извлеченных со дна южной части Тихого океана. На содержащихся в некоторых из этих конкреций минералах из группы полевых шпатов обнаружено большое число следов осколков деления (от 7 до 120 следов/мм²). Проведенный анализ показывает, что спонтанное деление урана, по видимому, может обусловить не более 10—20% от наблюдаемого эффекта. Одним из возможных объяснений наблюдаемого избытка следов осколков деления является предположение о спонтанном делении далеких трансураниевых элементов земного или космического происхождения, содержащихся в конкрециях.

В последние годы появилось значительное число теоретических и экспериментальных работ, посвященных проблеме существования весьма стабильных далеких трансураниевых элементов [1—11].

Однако теоретические исследования, в которых с большой степенью надежности предсказывается область существования таких элементов, очевидно, не могут дать достаточно точного значения периода полураспада, а также атомного номера Z для наиболее долгоживущего нуклида.

С другой стороны, экспериментальные исследования природных минералов, проводившиеся Шинтельмейстером [7], Чердынцевым [8], а также Джерри и Адамсом [9] привели к обнаружению неизвестного α -излучателя с энергией $\approx 4,6$ Мэв, который, согласно данным авторов первых двух работ, имеет химические свойства, близкие свойствам осмия.

Тем не менее, заключение авторов работы [10] о том, что наблюдаемая α -активность принадлежит трансураниевому элементу — химическому аналогу осмия ($Z = 108$), не представляется достаточно надежным. По-видимому, пока не исключены другие возможности объяснения наблюдаемого эффекта, не требующие столь радикальных предположений.

* Адрес: Москва, Главпочтамт, п/я 79, СССР.

В работе П. Фаулера и сотрудников по исследованию тяжелой компоненты космического излучения, выполненной методом ядерных эмульсий, сообщалось об идентификации очень тяжелых частиц с зарядом $Z = 104-108$ [11]. Этот результат был получен авторами [11] в предположении, что плотность почернения следа в ядерной эмульсии пропорциональна квадрату заряда частицы Z^2 . Однако, как показано в работе [12], в области ядер $Z/137\beta \approx 1$ необходимо учитывать высшие члены ряда в теории возмущений, что приводит к уменьшению заряда Z на 5—10% по сравнению со значениями заряда, полученными в работе [11].

Результаты этой работы не получили подтверждения и в проводившихся одновременно экспериментах Флейшера и др. [13] по регистрации тяжелой компоненты космического излучения с помощью пластиковых детекторов.

Таким образом, вопрос о существовании далеких трансурановых элементов в первичном излучении остается открытым; можно лишь указать на основании работы [11], что верхняя граница потока таких ядер составляет $\leq 5 \cdot 10^{-10}$ ядер/см² на границе атмосферы Земли.

Тем не менее, несмотря на отсутствие однозначного результата проводившихся экспериментов, нельзя было полностью исключить возможность существования первозданных трансурановых элементов в земных минералах и горных породах [14].

При постановке своих экспериментов по поискам далеких трансурановых элементов американские исследователи опирались на результаты детальных теоретических расчетов, выполненных Нильссоном [6], согласно которым наиболее стабильными должны быть ядра области $Z = 110-111$. Однако предпринятые в США в 1968—69 г поиски трансурановых элементов — химических аналогов платины и золота — дали отрицательный результат [15, 16]. Была установлена лишь верхняя граница концентрации таких элементов в золоте и платине — 10^{-10} г/г, что соответствует кажущемуся периоду спонтанного деления для этих элементов 10^{18} лет.

При постановке аналогичных экспериментов в ОИЯИ чувствительность методик регистрации была существенно повышена — в 10^3-10^4 раз [17, 18].

По ряду причин были выбраны другие объекты исследований. В экспериментах по поиску эффекта спонтанного деления трансуранового элемента, содержащегося в свинце и его соединениях, с помощью диэлектрических детекторов были зарегистрированы следы осколков деления ядер [17].

Наблюдавшийся эффект соответствует кажущемуся периоду спонтанного деления, отнесенного к свинцу, $(2-4) \cdot 10^{20}$ лет. Контрольные опыты показали, что этот эффект не может быть обусловлен спонтанным делением урана, содержащегося в образцах, или делением свинца и примесей тория космическими частицами.

Наблюдавшаяся активность не могла быть обусловлена также спонтанным делением ядер свинца. Действительно, согласно данным систематики периодов спонтанного деления атомных ядер, период спонтанного деления свинца превышает 10^{40} лет.

Одно из возможных объяснений этого эффекта — спонтанное деление тяжелого элемента — химического аналога свинца или сопутствующего ему элемента, имеющего период полураспада свыше 10^8 лет, концентрация которого в образцах составляет 10^{-12} — 10^{-13} г/г [17]. Результаты работы [17] получили подтверждение в экспериментах по исследованию эффекта спонтанного деления в свинцовых стеклах и свинцовых минералах, выполненных методом пропорциональных счетчиков [18].

В этих опытах в счетчиках, загруженных свинцовым стеклом и галенитом, были зарегистрированы импульсы от осколков деления.

Наблюдавшийся эффект соответствует кажущемуся периоду спонтанного деления свинца $(3-5) \cdot 10^{20}$ лет, что достаточно хорошо согласуется с данными работы [17].

Несмотря на высокую чувствительность описанных выше методик [17, 18], проведение поисков далеких трансурановых элементов требует исследования большого числа образцов и значительных количеств исследуемых веществ. Кроме того, при такой постановке опыта не представляется возможным зарегистрировать спонтанное деление трансурановых элементов космического происхождения. Действительно, согласно верхней границе потока таких ядер, определенной в экспериментах Фаулера [11], полное число сверхтяжелых ядер на поверхности атмосферы за время существования Земли не превосходит $7 \cdot 10^7$ ядер на см^2 , что соответствует $3 \cdot 10^{-11}$ мг/ см^2 . Эти элементы испытывают радиоактивный распад и рассеиваются в толще осадочных пород и океана, что приводит к уменьшению их концентрации еще на много порядков. Так, если предположить, что эти элементы равномерно распределены в слое осадочных пород толщиной всего в один метр, то их концентрация не превосходит 10^{-16} г/г, что лежит за пределами чувствительности существующих методик. Необходимо было найти образцы, в которых в течение очень больших промежутков времени могли концентрироваться как далекие трансурановые элементы земного происхождения, так и трансурановые элементы из первичной компоненты космического излучения.

Академик А. П. Виноградов обратил наше внимание на возможность использования в качестве таких образцов железо-марганцевых конкреций. Железо-марганцевые конкреции — небольшие округлые образования диаметром до 5—7 см, состоящие из слоев окислов и гидроокислов железа и марганца.

Обычно эти вещества отлагаются на поверхности твердых частиц, таких, как зубы акул, органические остатки, фрагменты изверженных пород, частицы грунта [19, 20].

Такие образования имеют ряд свойств, делающих их уникальными объектами для поисков далеких трансурановых элементов.

1. Конкреции являются избирательным адсорбентом целого ряда тяжелых элементов, в том числе свинца, таллия, ртути, вольфрама; коэффициент обогащения таких элементов 10^5 — 10^6 по сравнению с океанской водой.

2. Возраст конкреций колеблется от нескольких сотен тысяч до миллионов лет.

3. Конкреции обычно находятся на глубине нескольких километров под водой, что практически полностью исключает фон от деления содержащихся в них ядер тяжелых элементов космическими лучами. Единственным источником фона в этих условиях является спонтанное деление ядер урана, входящего в состав конкреций.

4. Конкреции и содержащиеся в них включения органического и минерального происхождения в принципе могут служить детекторами осколков деления ядер.

Нами исследовались конкреции, собранные на дне южной части Тихого океана. В отличие от свинцовых стекол [17], наблюдать редкие следы осколков деления в рыхлом мелкодисперсном веществе конкреций практически не представлялось возможным. Однако для этой цели могли быть использованы твердые включения, входящие в состав конкреций.

По совету французских коллег были предприняты попытки обнаружить следы осколков деления в веществе зубов акул из конкреций.

Были отобраны наиболее сохранившиеся зубы — в основном с гладкой внешней поверхностью, которая тщательно очищалась от вещества конкреций и налета механическим путем и с помощью растворителей.

Однако попытки выявить следы осколков деления с помощью всевозможных травителей при различных режимах обработки не увенчались успехом, что, возможно, связано с относительно рыхлой мелкокристаллической структурой зубной ткани данных образцов.

Дальнейшее внимательное исследование центральной части большого числа конкреций показало, что в них содержатся также небольшие прозрачные стекловидные тела объемом до нескольких кубических миллиметров. Анализ показал, что эти включения являются минералами из группы полевых шпатов.

Присутствие таких минералов в конкрециях обусловлено, по нашему мнению, подводной вулканической деятельностью. Продукты вулканизма должны измельчаться при взаимодействии с океанской водой, что и приводило к появлению больших количеств мелких обломков минералов и стекол.

Большинство минералов из группы полевых шпатов являются высокоэффективными детекторами осколков деления ядер [21].

Для разработки режима травления эти минералы облучались потоком 10^5 осколков/ см^2 ^{244}Cm , затем обрабатывались в течение 5—30 минут в 3,5% плавиковой кислоте при комнатной температуре и просматривались под микроскопом при увеличении 450—900X. Следы от осколков деления имели форму ромбических пустотельных каналов шириной до 3—4 мк и длиной до 7—8 мк.

Минералы, извлеченные из конкреций, обрабатывались в указанных выше условиях и просматривались по площади под микроскопом. При просмотре отбирались только те поверхности, на которых можно было произвести идентификацию следов осколков деления. Регистрировались следы, имеющие длину не менее 2 мк. Результаты просмотра образцов приведены в таблице I.

Таблица I

№№ шп	Площадь мм ²	Число треков	Плотность следов на мм ²
1.	0,075	9	120
2.	0,24	21	87
3.	0,55	32	58
4.	0,38	18	47
5.	0,76	31	41
6.	0,47	14	30
7.	0,78	10	13
8.	1,20	9	7

Как видно из таблицы I, плотность следов осколков деления на минералах из конкреций изменяется в пределах от 7 до 120 следов/мм².

Наблюдаемый эффект мог быть обусловлен различными причинами:

1. Спонтанным делением урана, содержащегося в кристаллах полевого шпата из конкреций.

2. Спонтанным делением ядер, адсорбированных на поверхности кристаллов полевого шпата.

3. Спонтанным делением урана, содержащегося в тонком слое вещества конкреции (1—1,5 мг/см²), примыкавшем к поверхности минерала.

4. Спонтанным делением ядер неизвестного трансуранового элемента, содержащегося в прилегающем к минералам слое веществ конкреций.

Для проверки первого предположения были произведены измерения плотности следов осколков деления внутри некоторых из этих образцов. Минералы полевого шпата раскалывались по плоскостям спайности, обрабатывались в растворах плавиковой кислоты и просматривались под микроскопом.

На площади 2,8 мм² не было обнаружено ни одного трека осколков деления, что соответствует верхней границе эффекта внутри минералов 0,4 следов/мм². Это в десятки и сотни раз меньше плотности следов на поверхности минералов.

Для проверки второго предположения нами были произведены измерения длин следов 40 осколков в полевых шпатах.

Оказалось, что следы осколков деления имеют непрерывное распределение длин от 2 до 11 мк, что противоречит предположению об адсорбции тонкого слоя делящихся элементов на поверхности кристаллов.

Таким образом, наблюдаемый эффект мог быть обусловлен только спонтанным делением ядер, находящихся в слое вещества, окружающего минералы.

Для окончательного заключения о природе наблюдаемого эффекта решающее значение имеют данные о содержании урана в конкрециях и их возрасте.

Содержание урана в веществе конкреций, в которых были обнаружены минералы полевого шпата, определялось методом активационного анализа [22]. Оказалось, что в различных частях конкреций содержание урана примерно одинаково

и составляет $(2-3) \cdot 10^{-6}$ г/г. Таким образом для объяснения наблюдаемого эффекта за счет спонтанного деления урана необходимо предположить, что возраст конкреций составляет 10—30 миллионов лет для большинства исследованных образцов. Отметим, что измерение концентрации урана в слое вещества, непосредственно прилежавшем к минералу из конкреции, дало величину $5 \cdot 10^{-7}$ г/г, что в несколько раз меньше среднего содержания урана в конкреции.

Несмотря на большое число работ, посвященных определению возраста конкреций, достаточно надежные измерения возраста этих образований до последнего времени не были выполнены. Косвенные заключения о верхней границе возраста конкреций можно получить, исходя из скорости отложения донных осадков в мировом океане. Согласно данным, содержащимся в монографии [19], скорость отложения илов для южной части Тихого океана составляет 0,3—0,5 мм за 1000 лет или 30—50 см за 1 млн. лет.

Поскольку исследовавшиеся нами конкреции были собраны при поверхностном драгировании дна океана, можно заключить, что их возраст не превышает одного миллиона лет.

Другие сведения о возрасте исследованных нами конкреций были получены палеонтологическим методом в Институте геологии и геохронологии докембрия АН СССР. Содержащиеся в центральных частях конкреций экземпляры зубов акул были отнесены к четвертичному периоду (0—1 млн. лет) и эпохе плиоцена (1—9 млн. лет) [23], то-есть возраст конкреций, по-видимому, колеблется от сотен тысяч до нескольких миллионов лет.

Измерения скорости и времени роста конкреций, производившиеся радиевым и иониевым методами [20, 24, 25], дают различные результаты. На основании этих измерений можно было лишь заключить, что возраст конкреций составляет сотни тысяч — один-два миллиона лет.

Мы имели возможность произвести независимое определение верхней границы возраста исследовавшихся нами конкреций, измеряя плотность следов осколков деления в минералах из центральных областей конкреций и содержание урана в этих включениях. Измерения содержания урана в полевых шпатах из конкреций дали величину $(6-7) \cdot 10^{-8}$ г/г, плотность следов осколков спонтанного деления урана в этих минералах равняется 0,4 следов/мм². Таким образом, верхняя граница возраста исследованных нами конкреций составляет 2—2,5 млн. лет.

Исходя из верхней границы возраста и измеренного нами содержания урана в конкрециях, следует заключить, что для большинства образцов спонтанное деление урана может обусловить не более 10—20% от наблюдаемого эффекта (табл. I). Не исключено, что этот избыток следов осколков деления обусловлен спонтанным делением далеких трансурановых элементов земного или космического происхождения, содержащихся в малой примеси в веществе конкреций.

Различие эффекта, наблюдаемое на разных образцах из конкреций (табл. I), может быть обусловлено различной концентрацией спонтанно делящихся элементов в конкрециях из-за различия в адсорбции тяжелых элементов и скорости роста прилегающего слоя.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] В. М. Струтинский, Ю. А. Музыка, *Труды Международной конференции по тяжелым ионам*, том II, стр. 51, 1966.
- [2] V. M. Strutinsky, *Nuclear Phys.*, **A95**, 420 (1967).
- [3] Ю. А. Музыка, В. В. Пашкевич, В. М. Струтинский, *Ядерная физика*, **8**, 716 (1968).
- [4] Ю. А. Музыка, *Препринт ОИЯИ P7—4133*, 1968; *P7—4435*, 1969.
- [5] S. G. Nilsson, J. R. Nix, A. Sobiczewski, Z. Szymański, S. Wycech, C. Gustafson, P. Möller, *Nuclear Phys.*, **A115**, 545 (1968).
- [6] S. G. Nilsson, *Preprint UCRL-18355*, (1968).
- [7] I. Schintlmeister, Unpublished Report, Vien 1945. As cited by G. Müller, *Dissertation*, Technische Universität Dresden, 1963.
- [8] В. В. Чердынцев, В. Ф. Михайлов, *Геохимия*, № 1, 1963.
- [9] R. D. Cherry, K. A. Richardson, J. A. S. Adams, *Nature*, **202**, 639 (1964).
- [10] В. В. Чердынцев, В. Л. Зверев, В. М. Купцов, Г. И. Кислицина, *Геохимия* (1968).
- [11] С. Ф. Пауэлл, *Вестник АН СССР* **9**, 5 (1968).
- [12] В. Б. Семикоз, *Письма в ЖЭТФ*, **9**, 534 (1969).
- [13] P. V. Price, R. F. Fleischer, *Review Report at Intern. Conf. on Nuclear Track Registration in Insulating Solids*, Clermont-Ferrand, May 6–9, 1959, France, vol. I.
- [14] Г. Н. Флеров, Обзорный доклад, представленный на Совещание экспертов по структуре ядра 1—3 июня 1968 г; *Препринт ОИЯИ P7-4199*, Дубна 1968.
- [15] S. G. Thompson, *UCRL Report at APS Meeting in Miami*, 22 November, 1968.
- [16] J. J. Weselowski, W. J. R. Jewell, F. Guу, *Phys. Letters*, **28B**, 544 (1969).
- [17] Г. Н. Флеров, В. П. Перельгин, *Препринт ОИЯИ P7-4205* (1968); *Атомная энергия*, **26**, 520 (1969).
- [18] Г. Н. Флеров, Г. М. Тер-Акопьян, Н. К. Скобелев, В. Г. Субботин, Б. А. Гвоздев, М. П. Иванов, *Препринт ОИЯИ Д6-4554*, Дубна 1969.
- [19] А. П. Виноградов, *Введение в геохимию океана*, „Наука“ 1967.
- [20] Н. М. Страхов, Л. Е. Штеренберг, В. В. Калининко, Е. С. Тихомирова, *Геохимия осадочного марганцеворудного процесса*, „Наука“ 1968.
- [21] R. L. Fleischer, P. V. Price, *Geoch. Cosmoch. Acta*, **28**, 1705 (1964).
- [22] Х. Абдуллаев, А. Капусцик, О. Отгонсурен, В. П. Перельгин, Д. Чултем, *ПТЭ*, № 2, 64 (1969).
- [23] М. Ф. Иванова, *Общая геология*, „Высшая школа“ 1969.
- [24] M. L. Bender, Ten-Lung Ku, W. S. Broecker, *Science*, **151**, 325 (1966).
- [25] E. D. Goldberg, *Submarine Geology*, Edited by F. Shepard, Happer and Row, New York 1963.