

## ПОИСК СВЕРХТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ПРИРОДЕ\*

*К. Д. Толстов*

Объединенный институт ядерных исследований, г. Дубна

Дается обзор работ по поискам сверхтяжелых элементов (СТЭ) в природе и обсуждаются методы, с помощью которых проводится обогащение образцов сверхтяжелыми элементами и их детектирование при начальной концентрации  $\lesssim 10^{-20}$  г/г. Рассмотрены следующие вопросы: 1) теоретические предпосылки существования СТЭ. Оценка синтеза на основе астрофизических данных и стабильности на основе ядерных моделей; 2) экспериментальные указания на существование СТЭ (изотопы Хе и Кг в метеоритах, изотопы Р1 в радиоактивных образцах, гигантские гало); 3) попытки обнаружения СТЭ (спонтанное деление, масс-спектрометрия, космические лучи, гигантские гало); 4) предполагаемые способы поиска СТЭ (исходный материал). Обогащение: центрифугированием жидкости; центрифугированием газовой фазы, масс-сепарацией. Детектирование: рентгеноскопия с использованием синхротронного излучения; флуоресценция под действием лазерного излучения, электронная микроскопия.

In the present paper we introduce a compilation of works devoted to the search of superheavy elements in nature. Theoretical predictions on the basis of astrophysics and the models of nuclear structure are discussed. Experimental indications of the possibility of existence of superheavy elements are presented. The trials of their observations in earth samples, meteorites and in cosmic rays are introduced.

The methods of concentration and detection of superheavy elements in natural samples are discussed which may allow on to register superheavy elements at initial concentration  $< 10^{-20}$  g/g.

### ВВЕДЕНИЕ

Проблема поиска сверхтяжелых элементов в природе имеет фундаментальное значение, и в ней можно различить три аспекта: 1) **астрофизический**, включающий вопросы эволюции Вселенной, звезд и синтеза элементов; 2) **физика ядра**. Существование сверхтяжелых элементов предсказывается современными моделями ядра, их обнаружение позволит уточнить принципиальные вопросы теории и даст новые обширные экспериментальные сведения с расширением границы существования элементов; 3) **прикладной**. Знание свойств сверхтяжелых эле-

\* Публикуется в порядке обсуждения.

ментов облегчит в последующем их накопление и синтезирование, что позволит иметь изотопы с новыми свойствами для технического применения, в том числе для портативных источников энергии.

В экспериментальном отношении проблема существования СТЭ возникла, начиная с синтезирования элементов тяжелее урана, вначале на реакторах, потом при ядерных взрывах и затем на ускорителях [1].

В последнее время в природе найден  $^{244}\text{Pu}$ , который был обнаружен сначала в метеоритах, а затем в земных породах и на Луне [2]. Открытие  $^{244}\text{Pu}$  указывает на мощь современных методов, так как распространенность этого изотопа в солнечной системе оценивается  $8 \cdot 10^{-27}$  г/г. Однако обнаружение  $^{244}\text{Pu}$  облегчалось известными ядерными и химическими свойствами плутония, а при поиске природных СТЭ обычно неизвестны заранее их свойства. Необходимо рассчитывать на довольно широкий интервал значений атомных масс и зарядов СТЭ. Следовательно, рациональный поиск должен производиться так, чтобы обнаружить большее число из возможных изотопов СТЭ. Методика обнаружения должна предусмотреть контролируемость и повторяемость результата.

## 1. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ПРЕДПОСЫЛКИ СУЩЕСТВОВАНИЯ СТЭ

Возможность существования в природе СТЭ предсказывалась в работах [3—8], при этом большое значение имела модель замкнутых ядерных оболочек, распространяемая на последующие значения  $Z = 114$  и  $126$ ;  $N = 184$ .

**Оценка синтеза СТЭ на основе астрофизических моделей.** Современные модели эволюции Вселенной предполагают, что на некоторой стадии расширяющейся горячей Вселенной начинается образование из протонов и нейтронов дейтонов и затем  $^4\text{He}$ . В природе отсутствуют ядра с  $A = 5$  и  $8$ , и преодоление этих порогов происходит в недрах звезд за счет тройных столкновений при большой плотности вещества. Синтезируются элементы до Fe и Ni включительно в термоядерных реакциях слияния протонов,  $^4\text{He}$  и более тяжелых ядер [9]. Область ядер Fe — Ni наиболее стабильна, что и объясняет большую распространенность этих ядер по сравнению с соседними.

Уменьшение затем энергии связи и рост кулоновского барьера приостанавливают термоядерный синтез более тяжелых элементов и они образуются из Fe—Ni в реакциях нейтронного захвата. Эти реакции происходят в  $S$ - и  $r$ -процессах. В  $S$ -процессе время между последовательными захватами нейтронов больше, чем время  $\beta$ -распада, и происходит накопление ядер в долине  $\beta$ -стабильности. При этом имеет место соотношение  $N_{i-1}\sigma_{i-1} = N_i\sigma_i$ , где  $N$  — число ядер;  $\sigma$  — сечение захвата нейтронов. В области маги-

ческих ядер с замкнутыми нейтронными оболочками 50, 82 и 126  $\sigma_z$  очень мало, и происходит накопление этих ядер. В  $r$ -процессе между поглощением нейтронов мало по сравнению с вре-

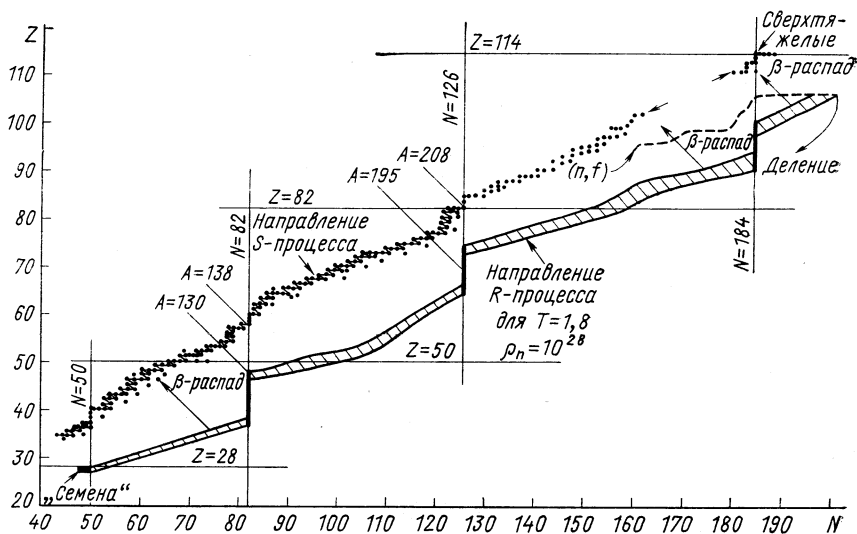


Рис. 1. Связь между  $Z$  и  $N$  в  $S$ - и  $r$ -процессах

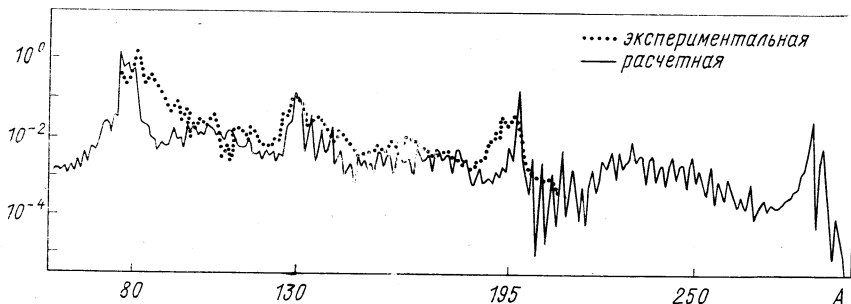


Рис. 2. Распространенность элементов

менем  $\beta$ -распада. В области магических чисел также происходит накопление ядер, но большая плотность нейтронов позволяет перейти через магические числа и преодолеть область между  $Po$  и  $Th$ , где находятся ядра с малыми временами жизни.

Связь между  $Z$  и  $N$  в  $S$ - и  $r$ -процессах показана на рис. 1 [10], причем в  $r$ -процессе расчет сделан для температуры  $1.6 \cdot 10^9$  К и плотности нейтронов  $1.8 \cdot 10^9 \cdot 10^{28}$   $n/cm^3$ . Расчеты распространенности ядер и наблюдаемые значения приведены на рис. 2 [10].

Расчетная кривая соответствует времени окончания синтеза и не учитывает последующий радиоактивный распад.

Из рис. 2 следует хорошее согласие кривых при их сложной форме в области магических чисел. Для ядер от урана до  $A = 280$  расчетная кривая показывает осциллирующее уменьшение распространенности элементов приблизительно на порядок и затем подъем до следующих магических чисел  $Z = 114$  и  $N = 184$ . Расчетные данные согласуются с экспериментальными в широком интервале атомных масс. Следовательно, синтез СТЭ до  $A \approx 300$  обоснован совокупностью современных ядерных и астрофизических данных. Следующим принципиальным вопросом является их устойчивость к  $\alpha$ - и  $\beta$ -распадам и спонтанному делению.

**Оценка стабильности СТЭ на основе моделей строения ядер.** Айзенберг и Грайнер указывают в разделе монографии [11], посвященном вопросу о существовании СТЭ, что для предсказания области стабильности нужно решить две проблемы: во-первых, экстраполировать стандартную модель оболочек на оболочки, неизвестные в настоящее время, во-вторых, исследовать коллективную потенциальную энергию ядер в окрестностях сверхтяжелых дважды магических ядер и дать предсказания времен спонтанного деления,  $\alpha$ -распада и электронного захвата.

Первая проблема решалась фактически по аналогии: поскольку существует магическое число  $N = 126$  для нейтронов, считалось, что оно должно реализоваться и для протонов. Однако в первой из опубликованных работ [4], выполненной в ЛТФ ОИЯИ и основанной на анализе одночастичной системы нуклонных уровней в реалистическом потенциале, было показано, что наиболее вероятным кандидатом на роль центра «острова стабильности» является ядро  ${}_{114}\text{X}^{298}$  (не исключалось также, что ядра вблизи  $Z = 126$  могут обладать повышенной стабильностью). Существенно, что эти результаты были получены при значениях параметров конечного потенциала с диффузным краем, установленными для широкого интервала  $A$  существующих ядер из спектроскопических данных и из анализа процессов рассеяния частиц на ядрах.

Решению второй проблемы посвящено большое число работ. Коллективная потенциальная энергия ядер вычисляется с помощью капельной модели [4—8]. Оболочечные поправки в энергию тяжелого ядра, нестабильного по чисто капельной модели, приводят к возникновению барьера деления, особенно значительного для дважды магических тяжелых ядер.

Значение барьера для деления ядер в  $Z, N$ -плоскости приведены на рис. 3 [12]. Максимальные значения барьера  $\sim 11$  Мэв имеют место в области  $Z \approx 114$  и  $N \approx 184$ , в то время как для урана барьер  $\sim 7$  Мэв. Период полураспада для спонтанного деления  $T = \ln 2 / (\lambda P)$ , где  $\lambda$  — число ударов о барьер; равно числу

колебаний поверхности ядра;  $P$  — проникаемость барьера, рассчитанная аналогично процессу  $\alpha$ -распада и согласно [13] в приближении метода ВКБ равна:

$$P = \left[ 1 + \exp \left( 2 \int_{E_1}^{E_2} \sqrt{\frac{2}{\hbar^2} B(\epsilon) [W(\epsilon) - E]} d\epsilon \right) \right]^{-1},$$

где  $\epsilon$  — параметр деформации ядра;  $W(\epsilon)$  — потенциальная энергия барьера;  $E$  — энергия ядра. Массовый параметр  $B$  описывает инерцию ядра по отношению к деформации  $\epsilon$ .

Во многих оригинальных работах и обзорах [1, 7, 8, 11, 14, 15] получены как совпадения в предсказаниях значений  $Z$ ,  $N$  и распадных свойств СТЭ, так и значительные расхождения. Однако так называемый остров стабильности следует из большинства расчетов.

В  $Z$ ,  $N$ -плоскости расположение известных изотопов и изотопов, существование которых возможно, дано на рис. 4 [1]. Остров стабильности появляется примерно через 15 единиц

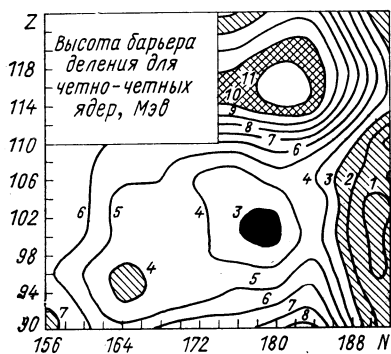


Рис. 3. Значение барьера деления ядер в  $Z$ ,  $N$ -плоскости

ниц по  $Z$  и  $N$  после промежутка, начинающая граница этого острова соответствует  $A \approx 310$ .

Как показано на рис. 5 [5],  $\alpha$ - и  $\beta$ -распады существенно уменьшают число ожидаемых относительно стабильных ядер. Изотопы с  $Z = 114$ ,  $112$  и  $110$  стабильны относительно спонтанного деления, время  $\alpha$ - и  $\beta$ -распадов  $\sim 1$  мин.

Однако, как заключают авторы, эти оценки сделаны в худших предположениях и, возможно, что периоды полураспада больше приведенных значений в  $10^5$  и более раз. В этом отношении важным фактором является увеличение барьера и, соответственно, времени жизни  $\sim 10^3$  для нечетных ядер по сравнению с соседними четными, что хорошо известно.

Расчеты времени жизни СТЭ приводятся на рис. 6 [13, 16] и, как видно, наблюдается большая стабильность в области  $Z \approx 114$  и  $N \approx 184$ . Таким образом, эти значения появляются во многих расчетах, проведенных при различных предположениях. Можно сделать вывод, что теоретические расчеты с той обоснованностью и критичностью, которые возможны на основе современных данных, указывают на существования относительно стабильных СТЭ.

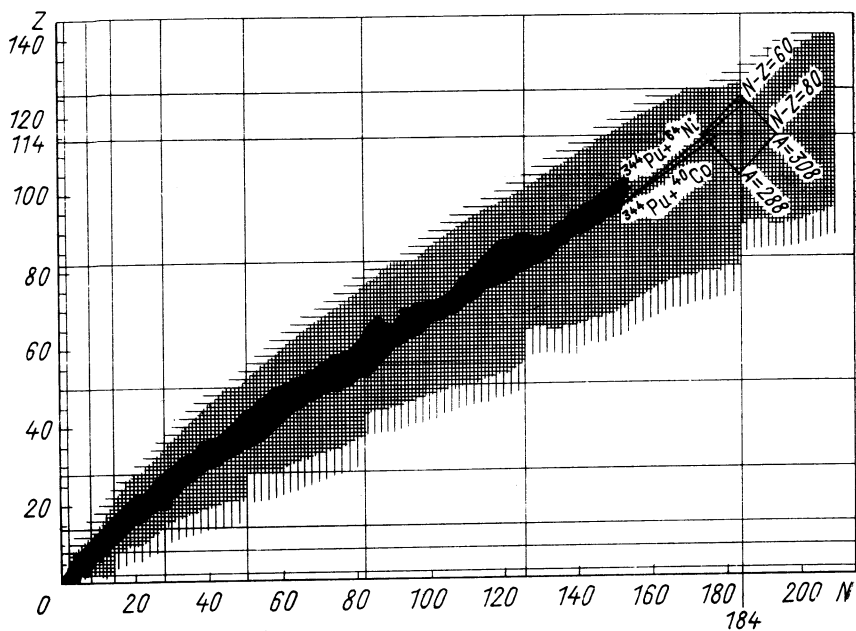


Рис. 4. Положение изотопов в  $Z, N$ -плоскости

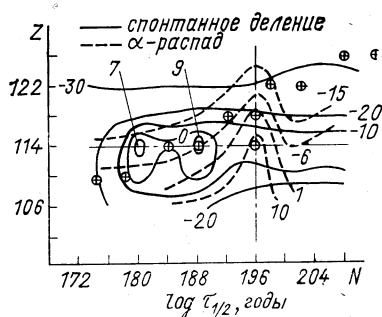


Рис. 5. Ожидаемые периоды полураспада сверхтяжелых элементов

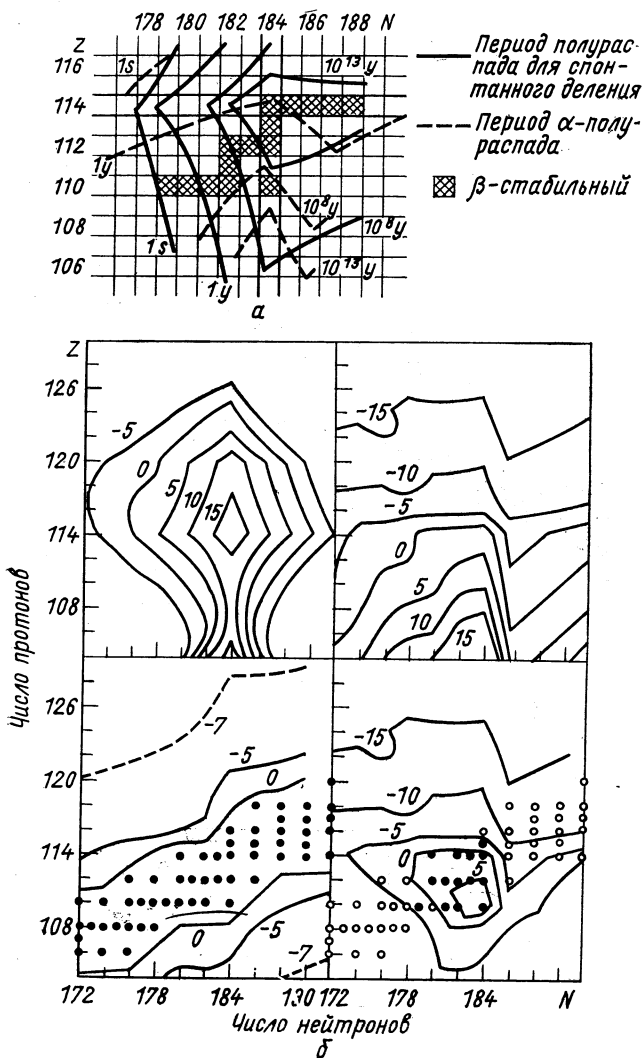


Рис. 6. Оценки времени жизни СТЭ:

б — верхние рисунки: слева — спонтанное деление, справа —  $\alpha$ -распад; нижние рисунки: слева — захват электронов и  $\beta$ -распад; справа — полное

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ УКАЗАНИЯ НА СУЩЕСТВОВАНИЕ СТЭ

Наличие в природе сверхтяжелых элементов зависит от времени их жизни по отношению ко всем типам распада и времени окончания синтеза. При этом получены достаточно надежные данные, содержащие на шкале времени основные этапы эволюции, включающие нуклеосинтез, образование Солнечной системы, метеоритов и Земли.

Эта шкала, приведена на рис. 7 [2] и, как следует из рисунка, время между окончанием нуклеосинтеза и образованием Солнечной системы, метеоритов и Земли занимает узкий интервал при-

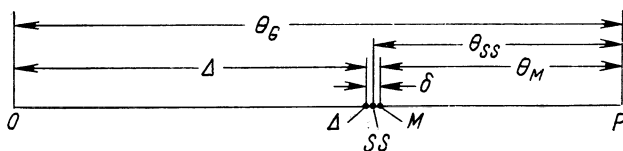


Рис. 7. Временная шкала нуклеосинтеза и образования Солнечной системы: 0 — начало нуклеосинтеза;  $\Delta$  — «конец» нуклеосинтеза — последний момент времени, когда  $r$ -процесс дает вклад в образование материала Солнечной системы; SS — образование Солнечной системы; M — образование метеоритов и Земли, P — настоящий момент

мерно в  $90 \pm 3$  миллионов лет, т. е. очень мало по сравнению с временем существования Земли  $\sim 4,6 \cdot 10^9$  лет. Таким образом, начало отсчета времени распада СТЭ известно с малой относительной погрешностью  $\sim \pm 0,02$ .

Сведения о наличии СТЭ в природе можно разбить: 1) на группу данных по содержанию изотопов элементов Хе, Кг, Рь в метеоритах, которые нельзя объяснить распадом известных радиоактивных элементов; 2) на сведения, полученные при исследовании земных материалов, в особенности так называемых гигантских гало.

**Ксенон и криптон.** Содержание изотопов Хе в метеоритах отличается от их земной распространенности. Так, в работе [17] рассмотрено содержание изотопов Хе в более простом классе метеоритов типа «хондрит», которые образуются при температурах около 400—600 К, т. е. в их состав могли войти более летучие соединения, а также корреляции между  $^{132}\text{Xe}$  и элементами: U, Th, In, Hg, а также между изотопами  $^{132}\text{Xe}$  и  $^{136}\text{Xe}$ . Первый почти целиком возник в процессе синтеза элементов, а второй является продуктом деления ядер. Наблюдалось постоянство содержания U и Th при изменении концентрации  $^{132}\text{Xe}$  в 100 раз (рис. 8, а) и резкое линейное возрастание концентрации  $^{136}\text{Xe}$ , In и Hg с ростом  $^{132}\text{Xe}$  (рис. 8, б и в).

Следовательно,  $^{136}\text{Xe}$  образовался не за счет деления U и Th, а от деления легко конденсируемых СТЭ с  $Z = 112 \div 119$  —



аналогов в периодической системе элементам типа Hg, Pb и др. Анализ метеорита Альенде в работе [18] позволил сделать вывод о возможном присутствии в момент образования метеорита элемента 115 (или 114, 113) в минерале, содержащем редкоземельные элементы (0,04% массы метеорита).

В [19] показано, что ни один из известных радиоактивных элементов, включая  $^{244}\text{Pu}$ , не может дать в углистых хондритах наблюдаемое соотношение изотопов Хе.

Сопоставления содержания изотопов  $^{136}\text{Xe}$  и  $^{86}\text{Kr}$  в метеоритах различных типов проведено в [20]. В углистых хондритах и неравновесных хондритах, в которых содержание изотопов  $^{136}\text{Xe}$  нельзя объяснить делением  $^{244}\text{Pu}$ , в дважды логарифмической шкале наблюдается линейная зависимость содержания изотопов  $^{136}\text{Xe}$  и  $^{86}\text{Kr}$  (рис. 9). Напротив, этой корреляции нет в метеоритах, относящихся к классу ахондритов, в которых  $^{136}\text{Xe}$  возникает в результате деления  $^{244}\text{Pu}$ . Надежность этих результатов

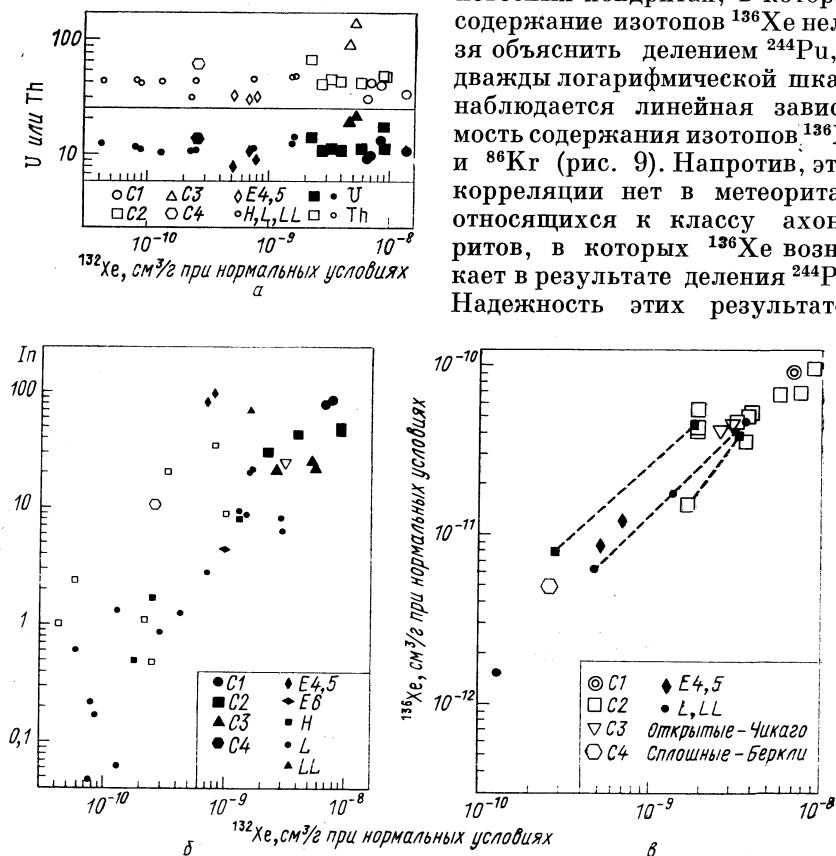


Рис. 8. Соотношение между содержанием  $^{132}\text{Xe}$  и U, Th, In и  $^{136}\text{Xe}$

для метеоритов различного типа убедительно показывает рис. 10 [21], на котором дан выход изотопов Хе за счет  $^{244}\text{Pu}$  в метеоритах и в специальных экспериментах с  $^{244}\text{Pu}$ . Избыток  $^{86}\text{Kr}$  можно

объяснить делением СТЭ с  $A \approx 300$ , а именно, несимметричным делением, которое приводит также к созданию изотопов в области магических чисел для Рb.

**Изотопы свинца в радиоактивных образцах.** Джоли и Мюгге [22] наблюдали образование в минералах около крупинок радиоактивных веществ гало окрашенных сферически симметричных слоев. В образцах крупинок, давших начало полониуму гало, исследовалось соотношение между изотопами Рb.

Анализ одного образца на ионном микропробном масс-анализаторе показал, что в нем нет детектируемых количеств U и Th,

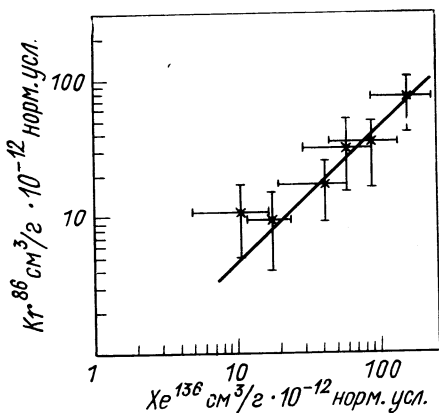


Рис. 9. Соотношение между содержанием  $^{136}\text{Xe}$  и  $^{86}\text{Kr}$

а Рb не имел изотопа  $^{204}\text{Pb}$ , содержание которого в обычном Рb составляет 1,4%. Следовательно, и Po и Рb не являлись потомками U или Th, а Рb существовавшим независимо, т. е. обычно распространенным. Далее, отношение изотопов  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb} \geq 20$ , в то время как для естественного Рb оно равно 1,15. В других образцах Po гало отношение  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  оказалось равным 10; 12; 18; 22; 25; 62 и 80.

При образовании Рb от распада U с нормальным содержанием его изотопов максимальное отношение для изотопов Рb равно 21,8. Следовательно, обнаруженное большое значение этого отношения подтверждает наличие Рb от распада Po, который получен независимо от урановой распадной цепи.

**Гигантские гало.** Исследования радиоактивных гало [23] показали, что в случаях, когда размер крупинки — центров гало много меньше пробега частиц от распада ядер U и Th ( $\sim 1$  мкм), радиусы сферических слоев и интенсивность окраски совпадают

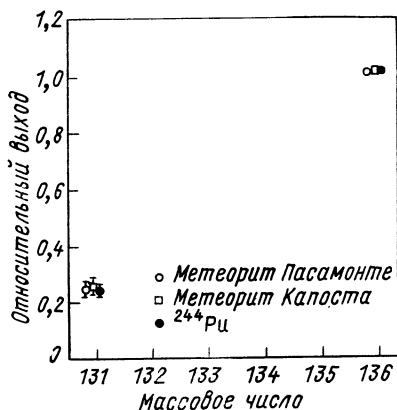


Рис. 10. Относительный выход изотопов Xe от деления  $^{244}\text{Pu}$  по наблюдениям в метеоритах и в специальных экспериментах по делению  $^{244}\text{Pu}$

с ожидаемым пробегом и интенсивностью  $\alpha$ -частиц для радиоактивных рядов U и Th. Радиусы гало заключены в интервале  $13 \text{ мкм} \leq R \leq 42 \text{ мкм}$ . Образцы радиоактивных гало показаны на рис. 11.

Опыт Резерфорда и Джоли [24] в 1913 г. показал, что при дозе  $\alpha$ -частиц  $\sim 1,5 \cdot 10^{13} \text{ ч/см}^2$  происходит в биотите (сланца, обогащенная Fe) эффект, подобный естественному радиоактивному гало. Следовательно, при радиусе гало  $R \approx 13 \text{ мкм}$  в крупинке должен

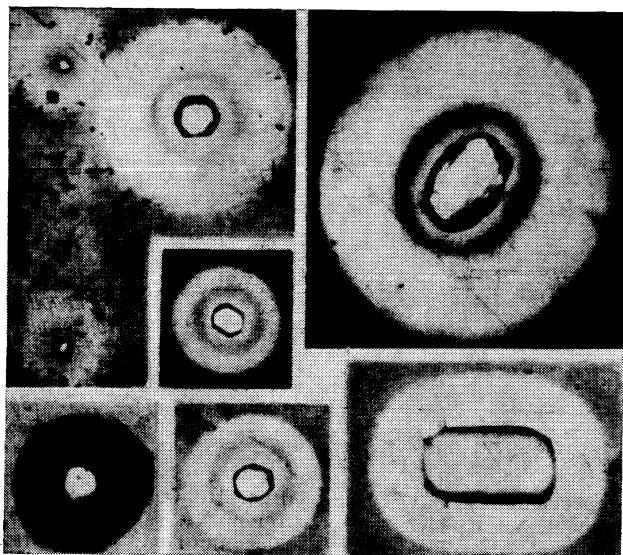


Рис. 11. Образцы радиоактивных гало

произойти распад  $\sim 3 \cdot 10^8$  ядер. Последующие уточнения [25] показали, что для первого уранового радиуса гало достаточно  $\sim 5 \cdot 10^7$  распадов. При облучении содержащих гало минералов  $\alpha$ -частицами с известной энергией от распада определенных ядер наблюдаемые пробеги с соответствующими радиусами гало совпадают. Эти данные приведены в табл. 1 [23].

Вслед за этими объясненными гало в работах [26, 27] были найдены гало с радиусами  $\sim 55$  и  $67 \text{ мкм}$ . Затем Джентри [28] сообщил о семи группах гало, найденных в монацитовых слюдах Мадагаскара с радиусами от  $45$  до  $110 \text{ мкм}$ , для образования которых необходимы  $\alpha$ -частицы с энергией до  $15 \text{ Мэв}$ . Эти гало названы гигантскими (рис. 12).

Одну группу гало с радиусами  $50$ — $58 \text{ мкм}$ , предположительно можно отнести за счет последнего в ряде Th распада  $^{212}\text{Po}$  с энер-

Таблица 1

Излучатель	Энергия, <i>Мэв</i>	Радиус естественных гало, <i>мкм</i>		Радиус гало, <i>мкм</i>	
		слюда	флюорит	слюда	флюорит
$^{238}\text{U}$	4,2	13,4; 13,8; 14,2	14,1	12,3; 12,7; 13,0	14,0
$^{234}\text{U}$	4,78	16,7	17,3	15,4	16,9
$^{210}\text{Po}$	5,3	19,3; 20,0	19,6	—	19,3
$^{218}\text{Po}$	6,0	23,0; 23,9	23,6	23,0; 22,2	23,5
$^{214}\text{Po}$	7,69	33,4; 33,9	34,6	33,0; 34,1	34,7

гией 10,5 *Мэв*, происходящего однако с малой вероятностью (1 : 5500). Для объяснения других групп гигантских гало нет известных ядер с необходимой энергией и (или) распространенностью.

В работе [28] рассматриваются и отвергаются семь гипотез, предложенных для объяснения гигантских гало:

1) вариации в пробеге  $\alpha$ -частиц из-за структурных изменений в слюде: в некоторых случаях близко от гигантских гало имеются U и Th гало с нормальными пробегами;

2) диффузия окрашивающего материала из радиоактивной крупинки: электронно-микроскопический анализ не показал изменений в составе вещества около гигантского гало;

3) диффузия радиоактивного материала: радиография показывает отсутствие следов распада в слюде вне крупинок, нет также следов деления в слюде;

4) эффект каналирования, заключающийся в изменении пробега  $\alpha$ -частиц, движущихся вдоль плоскостей раскола слоев слю-

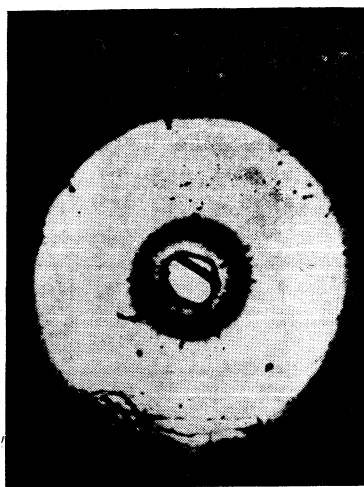


Рис. 12. Образец гигантского гало:  
деление шкалы = 10 мкм

ды: гигантские гало имеют сферическую симметрию, а соседние U и Th гало имеют нормальные радиусы;

5)  $\beta$ -радиоактивность: хотя в работе [29] найдены  $\beta$ -гало с радиусами в сотни микрон, они имеют диффузные границы вследствие различия энергии электронов при  $\beta$ -распаде, кроме этого существует корреляция между размером радиоактивной крупинки и радиусом  $\beta$ -гало, чего нет в U, Th и гигантских гало, образуемых около малых крупинок;

6)  $\alpha$ -частицы или протоны из  $(n, \alpha)$ - и  $(n, p)$ -реакций: не наблюдается появление в слюде окрашенных слоев при облучении ее потоком нейтронов  $5 \cdot 10^{18}$  ч/см<sup>2</sup>, что на несколько порядков превышает возможный естественный поток нейтронов;

7)  $\alpha$ -частицы с большим пробегом, сопровождающие спонтанное деление: имеют широкий энергетический спектр и возникают при СД урана с вероятностью только 1 : 400. Далее вероятность СД примерно на шесть порядков меньше чем  $\alpha$ -распад урана, следовательно, нельзя получить необходимую интенсивность для образования гало. Кроме этого, только в некоторых образцах гигантских гало травление слюды дало небольшое число следов деления урана.

Джентри цитирует в работе [28] также гипотезу Г. Н. Флорова, предложенную для объяснения гигантских гало с радиусами 62—67 мкм, согласно которой эти гало образуются  $\alpha$ -частицами с энергией 11,7 Мэв при распаде изомера <sup>212</sup>Po с периодом 47 сек. Джентри [25] указал, что этот изотоп не встречается обычно, т. е. не связан с распадом U и Th.

Распределение по числу случаев U, Th и гигантских гало и значения энергии  $\alpha$ -частиц приведены в табл. 2 [28].

Таблица 2

Число случаев	Интервал радиусов гало, мкм	Максимальная энергия $\alpha$ -частиц, Мэв	Число случаев	Интервал радиусов гало, мкм	Максимальная энергия $\alpha$ -частиц, Мэв
23	32—35	7,68	58	70—75	12,3
274	37—43	8,76	30	80—85	13,3
28	45—48	9,5	10	90—95	14,1
130	50—58	10,6	5	100—110	15,1
69	60—67	11,7			

В этой таблице, на основании изложенного, гало с радиусами 70—110 мкм нельзя объяснить распадом известных изотопов. Число их равно 103, т. е. 17%. Джентри [28] связывает эти эффекты с элементами  $Z \approx 120$ .

**Оценка возможной концентрации и периода полураспада СТЭ по гигантским гало.** На основе изложенных выше данных считаем, что для образования гигантского гало нужно не менее  $5 \cdot 10^7$   $\alpha$ -распадов. Если принять, что радиус радиоактивной крупинки  $R \approx 20$  мкм,  $A = 300$ , а плотность  $\sim 5$  г/см<sup>3</sup>, то начальная концентрация СТЭ в крупинке составит  $C \approx 1,5 \cdot 10^{-7}$  г/г. Используя это значение, оценим период полураспада СТЭ  $\tau$  в следующих предположениях.

Время окончания синтеза и формирования Земли прием одинаковым  $T_0 = 4,6 \cdot 10^9$  лет, так как относительная разница  $\sim 0,02$ . Время образования монацита  $T$  будем отсчитывать от настоящего момента. Концентрация при  $T_0$  относительно  $U$   $C_0 = 0,1$ , следовательно, в момент  $T$  концентрация относительно урана

$$C = C_0 2^{-(T_0 - T)/\tau} 2^{(T_0 - T)/\tau_u}$$

Доля урана в монаците в настоящее время  $P$ , а при  $T$ :  $P 2^{T/\tau_U}$ . Следовательно, получим соотношение

$$C = C_0 2^{-(T_0 - T)/\tau} 2^{T_0/\tau_u} P,$$

откуда

$$\tau = (T_0 - T) \lg 2 / [(T_0/\tau_u) \lg 2 - \lg (C/C_0 P)].$$

Если взять  $P = 0,1 \div 0,01$ , то при  $C = 1,5 \cdot 10^{-7}$  г/г основным параметром, от которого зависит  $\tau$ , будет  $T$ . Значения  $\tau$ , вычисленные для различных значений  $T$  и  $P$ , даны в табл. 3.

Как следует из таблицы оценки  $\tau$  заключены в довольно узком интервале:  $10^8 \div 2 \cdot 10^8$  лет\*.

### 3. ПОИСКИ СТЭ

Последние годы в некоторых лабораториях производятся поиски СТЭ в образцах земных материалов, в метеоритах и космических лучах. В поисках использованы довольно разнообразные методы, которые можно подразделить: на масс-спектрометрию, деление ядер нейтронами и спонтанное деление, исследование

\* В работе К. Ранкорна «New Sci.», 1977, v. 76, N 1080, p. 562. На основании анализа зависимости от времени образования кристаллических лунных пород, доставленных кораблем «Аполлон», сделан вывод о существовании СТЭ с периодом полураспада  $\sim 10^8$  лет.

Таблица 3

$T, 10^9$ лет	$P$	$\tau, 10^9$ лет
1	0,1	0,19
2	0,1	0,15
3	0,1	0,094
1	0,01	0,26
2	0,01	0,19
3	0,01	0,115

характеристического рентгеновского излучения и др., а также использовано и комбинированное применение некоторых из этих методов.

**Спонтанное деление.** При наблюдениях в образцах свинцовых стекол с помощью твердотельных детекторов в работе [30] было сделано заключение о наличии спонтанного деления СТЭ. Однако аналогичные поиски [31] в свинцовых минералах показали отсутствие следов спонтанного деления, хотя чувствительность экспериментов была в  $10^3$  выше, чем в экспериментах, описанных в [30]. Г. Н. Флеров, В. П. Перельгин в контрольных экспериментах [32] установили, что наблюдаемый ранее эффект можно полностью объяснить делением ядер свинца нейтронами космических лучей. Это указывает на трудности использования спонтанного деления в подобных исследованиях. Для дальнейшего рассмотрения удобно ввести специальный параметр: отношение периода полураспада ядер элемента к его концентрации в граммах на грамм материала. Для спонтанного деления U и средней относительной концентрации его в земной коре получим:  $T/C = 2,05 \cdot 10^{21}$  лет. Для регистрации нейтронов от спонтанного деления, как показано в работе [33], применялись специальные сцинтилляционные счетчики, а в работе [34] — пропорциональные счетчики. Для СТЭ с  $Z = 110, 114$  на основании расчетов, сделанных в [35], среднее число нейтронов  $\langle \nu \rangle$  ожидалось  $\sim 10,5$ .

Экспериментально [34] было получено  $\langle \nu \rangle \approx 1,5 \div 3$ , условия и результаты которых приведены в табл. 4.

Таблица 4

Образец метеорита	Масса образца, кг	Концентрация $^{238}\text{U}$ , $10^{-8} \text{ г/г}$	Дни экспозиции	Число совпадений отсчетов			Литература
				2-х	3-х	4-х	
Саратов	5,2	0,87	94	4	1	0	[34]
Альенде	3,8	1,62	40	3	0	0	
То же	22,5	1,62	55	12	1	0	
Ефремовка	11,7	4	102	14	1	0	
Альенде	10,5	1,62	45	5	2	1	[37]
Аналог	10	—	70	0	0	0	
Свинец	150	—	5	0	0	0	
Фон	0	—	50	0	0	0	

В соответствии с концентрацией U, приведенной в табл. 4, можно получить, что для фона от деления урана  $T/C = 5 \cdot 10^{23}$  лет, в то время как наблюдаемый эффект авторы работы [34] оценивают  $T/C \approx 3 \cdot 10^{22}$  лет. Период полураспада СТЭ оценивается в пределах

( $3 < \tau < 6$ )  $\cdot 10^8$  лет, а концентрация СТЭ в образцах в настоящее время  $\sim 5 \cdot 10^{-14}$  з/з.

В работе [36] говорится: «Тщательная проверка различных источников фона показала, что ни спонтанное деление урана, имевшегося в образцах метеорита, ни фон, генерируемый космическими лучами, ни собственный аппаратурный фон, не могут объяснить наблюдаемый эффект». Однако авторы работы [34] все же замечают, что: «Опубликованные данные по концентрации урана в метеоритах не устраняют возможности, что они содержат области повышенной концентрации. Это не позволяет нам сделать однозначное заключение о присутствии СТЭ в метеоритах».

Экспериментально с образцами метеорита Альенде были продолжены в работе [37] и результаты тоже даны в табл. 4. На основании этих данных и предшествующих [34] авторы делают вывод об обнаружении нового спонтанного делящегося нуклида. В работе [38] описаны эксперименты по химическому концентрированию спонтанно делящегося нуклида из вещества метеорита Альенде. Предполагая, что этот нуклид относится к СТЭ, вещество метеорита нагревалось в токе водорода и кислорода до  $1000^\circ\text{C}$ . Собирались продукты возгонки в предположении, что элементы 112—118 превосходят по летучести галлий. Для измерения актов спонтанного деления продуктов возгонки использовались пропорциональные счетчики, внутри которых укреплялись образцы и регистрировались осколки деления. Суммарное число отсчетов от образцов, выделенных из 4 кг метеорита за время  $\sim 85$  суток, составило 12. Об оценке фона в работе [39] говорится: «Опыт многолетней эксплуатации счетчиков позволяет заключить, что из 12 импульсов фоновыми могут быть не более 2—3».

При исследовании образцов метеорита Альенде в работе [39] был получен отрицательный результат обнаружения СТЭ, который в работе [34] объяснен тем, что достигнутый уровень чувствительности был ниже  $T/C \approx 10^{22}$  лет.

Для поисков по спонтанному делению или делению при облучении интенсивным потоком нейтронов в работе [40] была применена оригинальная и перспективная методика, так называемый «спиннер». Раствор исследуемого на радиоактивность материала заключался в стеклянный вращающийся цилиндр, который является счетчиком делений с  $4\pi$ -геометрией при отсутствии помех от  $\alpha$ - и  $\beta$ -распадов. В экспериментах использовались коммерческие образцы Pt, Au, Hg, Tl, Pb и W. Для их эка-аналогов, т. е. элементов  $110 < Z < 115$ , в предположении периода полураспада  $\tau = 10^9$  лет была получена оценка возможной концентрации:  $3 \cdot 10^{-13} \div 5 \cdot 10^{-14}$  з/з. Достигнутый уровень  $T/C$  составлял  $3 \cdot 10^{21} \div 2 \cdot 10^{22}$  лет.

**Масс-спектрометрия.** Образцы минералов [42] испарялись в ионном источнике масс-спектрометра «Сидони» и одновременно



собирались на пластинке кварца массы от 293 до 314, затем сверху помещалась такая же кварцевая пластинка и этот сэндвич облучался быстрыми нейтронами на реакторе. Кварц был выбран вследствие низкого содержания урана ( $10^{-11} \div 10^{-14}$  г/г). По обычной методике твердотельных детекторов наблюдалось совпадение треков от деления ядер в обеих кварцевых пластинках. Если принять, что барьер для деления 9 эв, а сечение деления 1 барн, то результаты экспериментов указывают, что концентрация СТЭ  $\sim 10^{-12}$  г/г. Наблюдался один случай тройного деления и, если его приписать СТЭ, то концентрация  $\sim 10^{-15}$  г/г.

В работе [43] даны результаты исследований, когда масс-спектрометрии подвергались образцы марганцевых конкреций, лунной пыли и метеоритов. На коллекторе собиралось вещество с массой  $A \approx 300$  и облучалось нейтронами на реакторе, чтобы иметь возможность наблюдать случаи деления. Результаты, полученные на некоторых образцах, соответствуют концентрации от  $10^{-11}$  до  $10^{-13}$  г/г, однако их нельзя с уверенностью приписать наличию СТЭ, так как возможно из ионного источника образовывались и молекулярные соединения U и Th.

**Поиски в космическом излучении.** В предположении, что СТЭ могут синтезироваться во время взрыва сверхновых звезд, т. е. сравнительно недавно, их присутствие можно ожидать среди частиц космического излучения. При этом главной проблемой является выделение СТЭ на фоне ядер U и Th. В работах [44] приводится эксперимент, выполненный с помощью ядерных фотоэмульсий и твердотельных детекторов, в котором регистрировались ядра космического излучения, причем произведение площади слоев в квадратных метрах на время экспозиции в часах составляло  $900 \text{ м}^2 \cdot \text{ч}$ . Из этих экспериментов и аналогичных в последующем, результаты которых суммированы в работе [44], можно было заключить о наличии одного возможного случая с  $Z \geq 100$ . Более перспективно наблюдение следов тяжелых ядер в метеоритах и минералах на поверхности Луны [45], так как время экспозиции в данном случае может достигать многих миллионов лет.

Однако работа [46] указывала на то, что методика твердотельных детекторов не позволяла пока определять заряды тяжелых ядер с точностью выше 10%. Следовательно, ненадежно разделение ядер U и  $Z = 100$ . Наблюдения не показали [46] наличие следов СТЭ в кристаллах оливина из метеоритов.

Продолжая исследования, В. П. Перельгин и др. [47] делают вывод, что видимая длина следов ядер Th и U от остановки в кристаллах оливина из метеорита Марьялахти не превышает 900 мкм, а ядра с  $Z \geq 110$  должны иметь видимую длину  $\geq 1400$  мкм. При анализе 1300 следов с  $Z \geq 70$  имелся один с  $l \geq 110$  мкм и мог быть обусловлен ядром с  $Z \approx 97$ .

В экспериментах О. Отгоноурена и др. [48] анализировалось наличие следов спонтанного деления в образцах железо-марганцевых конкреций, извлеченных с больших глубин Тихого океана. В таких конкрециях по предположению А. П. Виноградова ожидалось накопление СТЭ. В работе [48] указывается на превышение числа треков над их оценками от спонтанного деления урана. Однако в последующих экспериментах [49], выполненных методом регистрации нейтронов от спонтанного деления, был получен негативный результат. В этих экспериментах испытывались 40 образцов минералов и получено отношение  $T/C = 10^{23}$  лет.

**Поиски в образцах гигантских гало.** В последнее время был проявлен большой интерес к поискам СТЭ в образцах крупинок, являющихся источниками гигантских гало. Это связано с опубликованием Джентри и др. [50] сообщения о возможном наблюдении в образцах крупинок характеристического рентгеновского излучения СТЭ. Как следует из результатов, приведенных в разд. 2, выбор этих образцов для исследования обоснован, так как происхождение гигантских гало не было объяснено. В этих экспериментах крупинки, образующие гигантские гало, облучались пучком протонов с энергией до  $5,7 \text{ МэВ}$  при диаметре пучка  $30 \text{ мкм}$ . Регистрировалось характеристическое рентгеновское излучение с энергией выше  $L$ -линий для урана, т. е.  $>21,54 \text{ кэВ}$ . Расчеты линий характеристического рентгеновского излучения для элементов  $92 \leq Z \leq 126$ , проведенные в работах [51, 52], дают для энергии линий погрешность  $\sim 0,1\%$ , а также показывают хорошее согласие расчетов с известными линиями для U.

Расчеты интенсивностей линий при контрольном сравнении с U также показывают хорошее согласие, например, относительная интенсивность линий  $KL_{II}/KL_{III}$  для U в расчетах, приведенных в [53], равна  $0,625$ , а экспериментальное значение —  $0,608 \pm \pm 0,022$ . Результаты экспериментов [50] показаны на рис. 13, а. Из результатов этого эксперимента и химического анализа крупинок авторами работы [50] был сделан вывод, что возможное присутствие известных элементов не может объяснить рис. 13, а, пик на котором был отнесен к элементу с  $Z = 126$ . Ожидаемое содержание СТЭ в крупинке оценивается примерно как  $10^{-10} \text{ г}$ . Если принять, что радиус крупинки даже  $30 \text{ мкм}$  и плотность  $\sim 10 \text{ г/см}^3$ , то концентрация СТЭ будет  $\sim 10^{-4} \text{ г/г}$ , т. е. чрезвычайно большой. Эта цифра в  $10^3$  раз превышает  $C_0$  — начальную концентрацию СТЭ, необходимую по данным  $\xi$  (разд. 2) для образования гигантских гало. Далее очевидно, что снижение оцененной концентрации только в 10 раз приведет к тому, что пики на рис. 13, а сольются с фоном. Следовательно, точность экспериментов, приведенных в [50], не позволяла детектировать СТЭ при концентрации  $\sim 10^{-5} \text{ г/г}$ , т. е. была очень низкой.

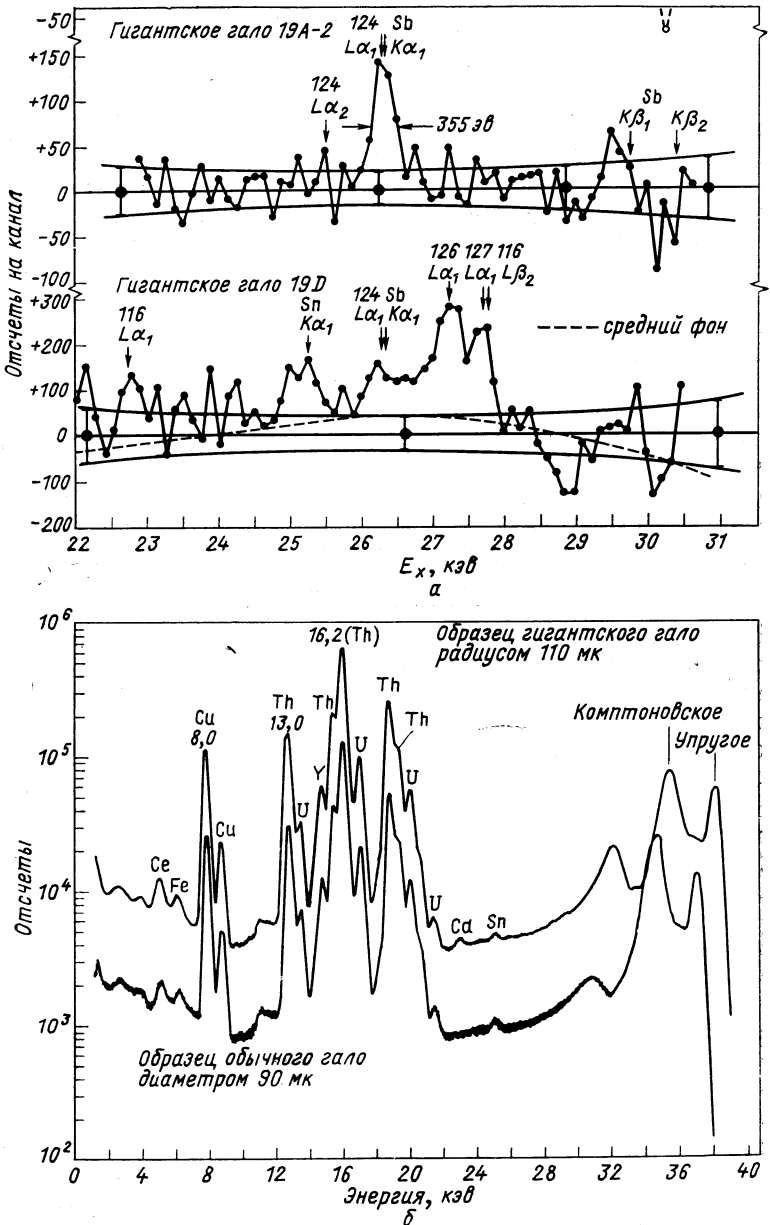


Рис. 13. Рентгеновские спектры в образцах гигантских гало: а — [50]; б — [546]

Эти [50] эксперименты были повторены в работе [54а], выполненной аналогичной методикой при энергии протонов  $3 \text{ МэВ}$  и в [54б] при возбуждении характеристического рентгеновского излучения с помощью синхротронного излучения. Результаты работы [50] не подтвердились. Наблюдаемые линии характеристического рентгеновского излучения объяснялись в [54а] К-линиями от присутствия следов элементов: Rh, Sb и Te. Отмечается, что происхождение гигантских гало остается не объясненным.\*

Спектр характеристического рентгеновского излучения, полученный в работе [54б], при исследовании образцов, давших начало гигантским и обычным гало, приведен на рис. 13, б. Как следует из рисунка, эти спектры подобны и в работе [54б] сделан вывод об отсутствии следов СТЭ с зарядом  $105 < Z < 126$  с концентрацией  $\sim 5 \cdot 10^9$  атомов в образце или  $\sim (1-2) \cdot 10^{-12} \text{ г/г}$ .

Отрицательный результат был получен и авторами работы [55] при выделении СТЭ на масс-спектрометре из монацитов, в которых содержались гигантские гало. Однако предел обнаружения СТЭ ограничен относительной концентрацией СТЭ, равной примерно  $10^{-12} \text{ г/г}$ . В экспериментах использовались не крупинки, образующие гигантские гало, а шлифы монацита. Следовательно, точность, достигаемая в этих экспериментах, еще далека от необходимой для объяснения гигантских гало наличием СТЭ в момент образования монацита, так как на основе разд. 2 для возникновения гигантских гало достаточно  $\sim 5 \cdot 10^7$  атомов, т. е. относительной концентрации  $\sim 2,5 \cdot 10^{-8} \text{ г/г}$  в момент образования монацита. Возраст монацитов оценивается до  $3 \cdot 10^9$  лет, и если взять его даже равным  $10^9$  лет и  $\tau \approx 0,1 \cdot 10^9$  лет, то современная концентрация будет  $< 2 \cdot 10^{-11} \text{ г/г}$ .

В экспериментах, рассмотренных в [56], два образца минералов, использованных в [50], исследовались с помощью регистрации нейтронов от предполагаемого двойного и тройного спонтан-

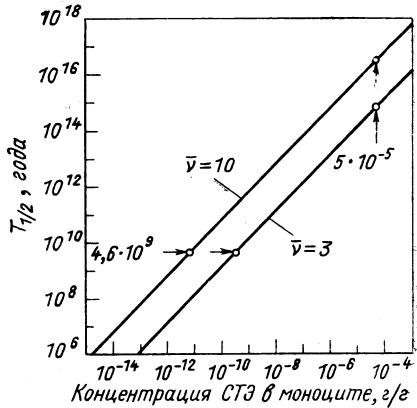


Рис. 14. Связь между относительной концентрацией сверхтяжелых элементов, периодом полураспада и средним числом нейтронов деления

\* Невозможность объяснения гигантских гало без привлечения СТЭ отмечалась недавно на специальном симпозиуме в США («Science News», 1978, v. 113, p. 236).

ного деления СТЭ. Образец Д-6356 содержал 49 г монацита, в котором находилось 0,265 г U и 3,63 г Th, а образец 7187 — 103 г монацита с 0,348 г U и 8,16 г Th. Нейтронный детектор имел высокую эффективность счета одиночных нейтронов 0,47. Из детальной математической обработки результатов экспериментов можно сделать вывод об отсутствии нейтронной активности от спонтанного деления СТЭ. Результаты экспериментов приведены в табл. 5.

Таблица 5

Суммарная множественность нейтронов в опытах с монацитами Мадагаскара

Множественность	Полный отсчет	Фон счетчика	Исправленный отсчет	Отсчет после поправок	Число отсчетов за 1 день
Образец D6356, массой 349 г					
2	$539 \pm 23,9$	$190,7 \pm 8,3$	$352,7 \pm 6,3$	$-4,4 \pm 24,8$	$-0,34 \pm 1,9$
3	$87 \pm 9,3$	$13,7 \pm 2,2$	$71,8 \pm 2,1$	$+1,5 \pm 9,8$	$+0,12 \pm 0,8$
4	$6 \pm 2,4$	$1,4 \pm 0,7$	$9,8 \pm 0,9$	$-5,3 \pm 2,7$	$-0,41 \pm 0,2$
$\geq 5$	0	$0,36 \pm 0,36$	$2,1 \pm 0,5$	$-2,5 \pm 0,6$	$-0,19 \pm 0,05$
Образец D7187, массой 232 г					
2	$884 \pm 27,7$	$304,6 \pm 26,3$	$564,5 \pm 12,6$	$+14,9 \pm 40,2$	$+0,95 \pm 2,6$
3	$133 \pm 11,5$	$20,5 \pm 6,8$	$113,7 \pm 4,4$	$-1,2 \pm 14,1$	$-0,08 \pm 0,9$
4	$19 \pm 4,3$	$1,6 \pm 1,6$	$15,5 \pm 1,9$	$1,94 \pm 5,0$	$+0,12 \pm 0,32$
$\geq 5$	$3 \pm 1,7$	0	$3,7 \pm 0,9$	$-0,7 \pm 2,0$	$-0,04 \pm 0,13$

На рис. 14 сопоставляется предельное соотношение между концентрацией  $C$  и  $T_{1/2}$  в предположении  $\langle \nu \rangle = 3$  для тройного деления и  $\langle \nu \rangle = 10$  для двойного. Согласно рисунку, если для элемента  $Z = 126$   $T_{1/2} = 4,6 \cdot 10^9$  лет (возраст Земли), то при  $\langle \nu \rangle = 10$   $c \geq 7,5 \cdot 10^{-12}$  г/г, а для  $\langle \nu \rangle = 3$  концентрация  $C \geq 2,9 \cdot 10^{-10}$  г/г.

#### 4. СПОСОБ ПОИСКА СТЭ

Суммируя изложенные результаты, можно заключить, что в принципе возможно обнаружить на земле СТЭ, если период полураспада хотя бы одного звена в радиоактивной цепи первоначального изотопа СТЭ —  $\tau_{1/2} \geq 0,1 \cdot 10^9$  лет. Неоднозначные и в некоторых случаях противоречивые заключения об обнаружении СТЭ показывают, что относительная их концентрация  $C$  не превышает  $10^{-13}$  г/г.

В предполагаемом способе поисков СТЭ ставится задача уменьшить достигнутое значение  $C$  примерно  $10^6$  раз, т. е. детектировать СТЭ при  $C \approx 10^{-20}$  г/г. Обнадеживающим фактором при

достижении таких значений  $C$  является, как изложено в работе [2], обнаружение в метеоритах и на Земле  $^{244}\text{Pu}$ , концентрация которого в земной коре еще меньше  $10^{-20}$  г/г.

Этот метод предполагает последовательное повышение концентрации СТЭ в выбранных образцах и затем детектирование. Обогащение будет осуществляться физическими методами; чтобы исключить потерю СТЭ на каком-либо этапе обогащения, так как предполагается искать СТЭ в широком интервале:  $110 \leq Z \leq 126$ , не зная валентности и других физико-химических свойств этих элементов.

Схема предполагаемого метода следующая:

обогащение СТЭ центрифугированием жидкого агрегатного состояния — обогащение центрифугированием газовой фазы — масс-сепараторное обогащение — детектирование.

В качестве методов детектирования предполагается применить характеристическое рентгеновское излучение, флуоресценцию под действием лазерного излучения, трековые детекторы и наиболее чувствительный электронно-микроскопический метод.

**Исходный материал.** В первую очередь поиск предполагает вести в материалах земной коры, так как время формирования (см. разд. 1) планет солнечной системы и метеоритов является близким, и, следовательно, уменьшение концентрации СТЭ приблизительно одинаково.

Рациональный выбор материалов земного происхождения для поисков СТЭ обсуждается в работе [57]. В ней рассмотрены правила о геохимическом сочетании элементов в различных природных материалах. Один из очень существенных выводов авторов заключается в том, что почти всегда будут вместе встречаться элементы с  $Z = 110, 114$  и  $126$ , т. е. наиболее устойчивые по теоретическим предсказаниям. В работе дана таблица минералов перспективных для поисков СТЭ. Следовательно, первым из исходных материалов целесообразно взять сочетание нескольких минералов из этой таблицы, а также монациты, в которых найдены гигантские гало. Вторым материалом может явиться смесь вод минеральных источников, обогащенных теми элементами, с которыми наиболее вероятно сочетание СТЭ. (Смесь вод целесообразно брать для опробования нескольких образцов в одном эксперименте.) Третьим исходным материалом может быть океаническая вода, которая содержит всю совокупность элементов. Однако она перспективна только с точки зрения полноты набора элементов, так как содержание многих из них в океанской воде значительно меньше, чем их средняя распространенность в земной коре (табл. 6).

Начнем расчеты с использования океанической воды, потому что известный химический состав ее позволяет заранее знать условия процесса обогащения, а также фоновые условия по отношению к содержанию U и Th.

Таблица 6

Элемент	Концентрация в океанической воде, г/г	Количество элементов в 1 т, г	Число атомов в 1 т	Концентрация в земной коре, г/г
O	0,859	$8,59 \cdot 10^5$	—	0,491
H	0,108	$1,08 \cdot 10^5$	—	0,01
Cl	0,012	$1,2 \cdot 10^4$	—	$2 \cdot 10^{-3}$
Na	0,0106	$1,06 \cdot 10^4$	—	0,024
Mg	0,00127	$1,27 \cdot 10^3$	—	$1 \cdot 10^{-3}$
S	0,00088	$8,8 \cdot 10^2$	—	$1 \cdot 10^{-3}$
Ca	0,0004	$4,0 \cdot 10^2$	—	0,0325
K	0,00038	$3,8 \cdot 10^2$	—	0,0235
Fe	$10^{-8}$	$10^{-2}$	—	0,042
Pb	$4 \cdot 10^{-9}$	$4 \cdot 10^{-3}$	$1,16 \cdot 10^{19}$	$1,6 \cdot 10^{-5}$
U	$1,5 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$3,8 \cdot 10^{18}$	$4 \cdot 10^{-6}$
Th	$5 \cdot 10^{-10}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{18}$	$1 \cdot 10^{-5}$
Bi	$2 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$0,58 \cdot 10^{18}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Au	$5 \cdot 10^{-12}$	$5 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^{16}$	$5 \cdot 10^{-9}$
СТЭ ( $A=300$ )	$10^{-20}$	$10^{-14}$	$2 \cdot 10^7$	?
все				

Таблица 7

Элемент	Радиус атома, Å	Ион	Радиус иона, Å	Молекула	Радиус молекулы, Å
Pb	1,75	$H_2O^+$	1,35	$H_2O$	1,75
U	1,53	$SCN^-$	1,95	$N_2O$	2,0
Th	1,80	$OH^-$	1,53	$NH_3$	1,5
Au	1,55	$SO_4^{2-}$	2,30		

**Обогащение СТЭ центрифугированием раствора.** За исходный материал возьмем 1 т океанической воды, в которой состав основных элементов дан в табл. 6, составленной на основе данных работы [58].

В качестве первой ступени обогащения предлагается центрифугирование. В этом случае движение ионов и молекул океанической воды определяется равновесием центробежной силы и силы вязкости по закону Стокса, т. е.

$$M4\pi^2v^2R = 6\pi\mu r v, \quad (1)$$

где  $M$  — масса иона;  $v$  — число оборотов, сек;  $R$  — радиус в месте нахождения иона;  $r$  — радиус иона;  $\mu$  — коэффициент вязкости океанической воды. Радиусы некоторых атомов, ионов и молекул даны в табл. 7.

Как следует из табл. 7 радиусы отличаются не сильно. Следовательно, скорость движения атома или иона

$$v = 2\pi M v^2 R / (3\mu r), \quad (2)$$

при заданных  $v$ ,  $R$  и  $\mu$  будет зависеть в основном от массы иона  $M$ . В соответствии с табл. 7 в последующих расчетах при  $A > 200$  для радиусов ионов можно взять среднее значение  $\langle r \rangle \approx 2 \text{ \AA}$ . Вязкость обычной воды при  $90^\circ \text{C}$   $\mu = 3,15 \cdot 10^{-3}$  пуаз, а раствор 1 г хлористого калия в 1 л воды имеет вязкость на 2% меньше. Поэтому для океанической воды с достаточной точностью можно принять  $\mu = 3 \cdot 10^{-3}$  пуаз. Очевидно, что при центрифугировании более тяжелые ионы будут двигаться от центра и относительная скорость двух ионов с радиусами  $r_1$ ,  $r_2$  и атомными массами  $A_1$ ,  $A_2$  согласно (2) будет следующая

$$v = (2\pi/3\mu) M v^2 R (A_1/r_1 - A_2/r_2), \quad (3)$$

где  $M$  — масса нуклона.\*

В соответствии с данными табл. 6 при обогащении необходимо главным образом понизить концентрацию элементов от Cl до K, так как остальные содержатся в меньшем количестве. Более тяжелым в этом ряду является ион  $\text{SO}_4$ . Если  $v = 500 \text{ об/сек}$ ,  $R = 30 \text{ см}$ , то из (3) получаем, что относительная скорость иона с  $A_1 = 300$  и иона  $\text{SO}_4$  будет  $v \approx 10^{-4} \text{ см/сек}$ . Следовательно, за 1 сутки относительное смещение ионов составит  $\langle l \rangle \approx 8,6 \text{ см}$ .

Пусть разность внешнего и внутреннего радиусов центрифуги  $\Delta R = 2 \langle l \rangle$  и отбираем часть сепарируемого раствора на внешнем радиусе, тогда концентрация легких элементов уменьшается вдвое. Следовательно, 10-кратное повторение сепарации уменьшит концентрацию легких элементов  $\sim 2^{10}$ , т. е.  $10^3$  раз (оставшееся количество серы составит  $< 1 \text{ г}$ , а хлора  $< 12 \text{ г}$ ). При этом можно считать, что не произошло значительного уменьшения концентрации элементов с атомной массой  $A \approx 200$ , т. е. их количества соответствуют данным в табл. 6.

При использовании воды из минеральных источников будем иметь аналогичные соотношения, а при использовании минералов вначале их необходимо растворить в агрессивной среде, например, для вскрытия 1 т ториевого монацита [по данным работы [59] нужно 1,2 т щелочи и 1 т воды. †

\* Отметим, что формула (3) по динамическим переменным ( $v$ ,  $R$ ) аналогична (см. Основы теории газовой диффузии. М., Атомиздат, 1973) формуле

$$v = D (A_1 - A_2) 4\pi^2 v R / (R_{\text{газ}} T),$$

где  $D$  — коэффициент диффузии;  $R_{\text{газ}}$  — газовая постоянная;  $T$  — температура. Однако сюда входит неизвестный для СТЭ коэффициент  $D$ , а в (3) радиусы ионов, которые оцениваются, исходя из табл. 7, с достаточной точностью.



**Центрифугирование газовой фазы.** Масса тяжелых элементов в их фракции при использовании 1 т океанической воды составит ~15 г. Тяжелая фракция должна быть высушена и затем твердый остаток переведен в газообразное состояние. При этом желательно разрушить существующие химические связи и создать новые, с наибольшим превышением атомной массы химических соединений СТЭ над атомной массой соединений остальных элементов.

Если в центре отношение концентраций атомов или молекул с атомной массой  $A_1$  и  $A_2$  есть  $K$ , то на радиусе, соответствующем линейной скорости вращения  $v$ , относительная концентрация \*

$$K = K_0 \exp[-v^2(A_1 - A_2)/(2RT)], \quad (4)$$

где  $R$  — газовая постоянная;  $T$  — температура.

При выбранных выше значениях радиуса центрифуги 30 см и 300 об/сек получим при разделении  $UF_6$  и  $SO_4$  согласно формуле (4) относительное уменьшение концентрации  $SO_4$ :  $K \sim K_0 \cdot 10^{-35}$ , т. е. высокую степень сепарации.

Как видно из (4),  $K$  не зависит от начального давления газа, поэтому для более быстрого обогащения и удобства отбора фракций целесообразно применить каскадное сепарирование, используя вначале центрифугирование с меньшей скоростью, а в конце меньшую плотность газа. В результате сепарации из 1 т океанической воды (при незначительной примеси элементов с  $A < 200$ ), будет выделено около 6 мг в основном Рb и U.

Выделение СТЭ из этого количества тяжелых элементов будет производиться с помощью масс-спектрометров.

**Разделение масс-спектрометрами.** По данным работы [60] в масс-спектрометрах возможно использование образцов массой  $10^{-13}$  г с детектированием  $10^5$  атомов. Следы элементов обнаруживаются при концентрации  $10^{-8}$ — $10^{-10}$ , а относительная концентрация изотопов, отличающаяся на пять порядков, определяется с погрешностью 10%. Следовательно, для СТЭ с  $A = 300$  достаточно  $5 \cdot 10^{-17}$  г, т. е. отношение масс СТЭ и элементов с  $A < 200$  будет  $8 \cdot 10^{-15}$ , что соответствует концентрации СТЭ в океанической воде  $\sim 5 \cdot 10^{-23}$  г/г.

Масс-спектрометры, работающие «на линии», позволяют детектировать импульсы от отдельных изотопов. Однако в нашем случае необходимо выделить и собрать атомы СТЭ для последующей их идентификации. Лабораторные масс-спектрометры имеют производительность  $\sim 1$  мг/ч, что вполне достаточно для разделения 6 мг элементов с  $A > 200$ . Главное условие, которое нужно выполнить, это получение в ионном источнике масс-спектрометра пучка ионов СТЭ, U и Рb, а не их молекулярных соединений.

\* Формула (4)—аналог барометрической (см. Основы теории газовой диффузии. М., Атомиздат, 1973).

**Рентгеноскопический анализ СТЭ.** Отделяемые с помощью масс-спектрометра СТЭ можно осадить на тонкой пленке площадью в несколько  $\text{мм}^2$ , причем нельзя гарантировать полное отсутствие U и Th, деление которых можно имитировать СТЭ. Поэтому способы доказательства наличия СТЭ должны обеспечить надежность определения Z и сохранность элементов.

Рассмотрим детектирование СТЭ с помощью характеристического рентгеновского излучения в соответствии с работами [51, 52], а также [61], в которой произведены расчеты характеристических линий для  $Z = 92 \div 170$  и получено хорошее согласие с экспериментальными данными для U. Процесс возбуждения характеристического рентгеновского излучения при бомбардировке атомов микропучками электронов, протонов или ионов рассмотрен в работах [50, 62, 63]. И, очевидно, возможно аналогичное применение этой методики с использованием синхротронного излучения, которое дает новые перспективы для детектирования СТЭ. Синхротронное излучение имеет точно рассчитываемый спектральный состав, зависящий от энергии электронов  $E$  и магнитного поля  $H$  в точке излучения. Существенная особенность синхротронного излучения — его поляризация, что облегчает отделение фона. Интенсивность излучения в интервале длин волн  $\Delta\lambda$

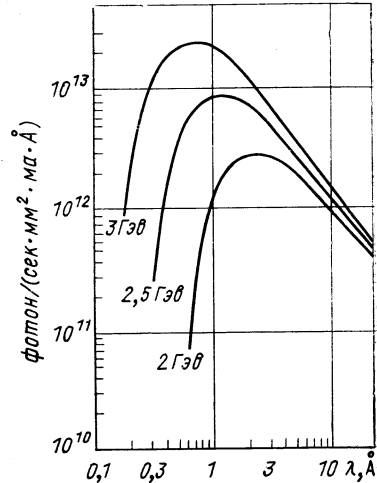


Рис. 15. Зависимость интенсивности характеристического рентгеновского излучения, возбуждаемого синхротронным излучением, от длины волны

$$\Delta I_{\lambda} = P(\lambda, E, H) \Delta\lambda$$

при  $\lambda \ll \lambda_c$ , где  $\lambda_c = \text{const}/E^2 H \Delta I_{\lambda}$  резко зависит от  $E$ . Параметры пучков синхротронного излучения, полученные на установке ВЭПП-3 в Новосибирске, позволяют иметь  $\Delta\lambda/\lambda = \Delta E/E = 2 \cdot 10^{-4}$ . Следовательно, например, для  $L_{\text{I}}-M_{\text{II}}$  линии U с энергией 19,5 кэВ получим разрешение по энергии  $\Delta E < 4 \text{ эВ}$ , что в 8 раз лучше, чем естественная ширина этой линии.

Все линии K-серии для элементов с  $Z > 100$  имеют  $\lambda < 0,08 \text{ \AA}$  и, следовательно, для них отсутствует фон излучения других элементов, так как край поглощения K-серии для U имеет  $\lambda = 0,087 \text{ \AA}$ . Зависимость числа фотонов от их энергии на выходе каналов пучков ВЭПП-3 показана на рис. 15 [64].

Согласно [65] ток электронов в ВЭПП-3 достигает 100 *ма* и в соответствии с рис. 15 при энергии фотонов 20 *кэв* освещенность *s* на выходе фотонного канала составит

$$s = (\Delta\lambda/\lambda) 2 \cdot 10^{17} \text{ ф}/(\text{см}^2 \cdot \text{сек}).$$

Следовательно, при разрешении  $\Delta\lambda/\lambda = 2 \cdot 10^{-3}$ , т. е. сравнимой с естественной шириной  $L_{\Gamma} - M_{\Gamma\Gamma} =$  линии для *U*, число фотонов

$$F = 4 \cdot 10^{14} \text{ ф}/(\text{см}^2 \cdot \text{сек}).$$

Поглощение фотонов атомами СТЭ оценим по аналогии с *U*, для которого известны коэффициенты поглощения. Для *L*-серии массовый коэффициент поглощения  $\mu_m = 80$ , а сечение поглощения  $\sigma = \mu_m A/N = 3,0 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$ . Для концентрации СТЭ в океанической воде  $10^{-20} \text{ г/г}$ , т. е. при выделении  $n = 2 \cdot 10^7$  атомов СТЭ, число поглощенных фотонов  $q = F\sigma n = 240 \text{ ф/сек}$ .

Поглощение фотона приводит к ионизации соответствующей электронной оболочки с испусканием характеристического рентгеновского излучения при ее заполнении. Следовательно, регистрация характеристического рентгеновского излучения позволит детектировать наличие СТЭ. Необходимо отметить преимущество синхротронного излучения для детектирования СТЭ, заключающееся в отделении фона вследствие большой монохроматичности и плавной регулировки энергии первичных фотонов синхротронного излучения, падающих на образец. Регулировка производится плавным изменением энергии электронного пучка в ускорителе.

Второй способ детектирования СТЭ — это дифракция синхротронного излучения на испытуемом образце. Согласно [64] достигнуто получение рентгенограмм от образцов массой  $\sim 10^{-10} \text{ г}$ , т. е.  $10^{11}$  атомов СТЭ. Время получения рентгенограмм в 100 раз меньше, чем на лучших рентгеновских трубках. Очевидно, что достигнутое разрешение не является предельным, так как интенсивность пучков возрастает, и для специальной цели возможно, как указано в работе [64], улучшение монохроматора и фокусирующих устройств. Кроме того, *K*-линии серии СТЭ свободны от фона.

**Лазерная спектроскопия.** В работе [66] детектирование атомов *U* производилось по наблюдению флуоресценции, возбуждаемой излучением лазера непрерывного действия с изменяемой длиной волны в диапазоне  $\lambda = 5600 \div 6200 \text{ \AA}$  при  $\Delta\lambda = 2 \cdot 10^{-2} \text{ \AA}$ . (Применялся лазер на кристалле с аргонной накачкой.) В работе осуществлено детектирование  $\sim 10$  атомов *U* в объеме наблюдения при их плотности  $10^3 \text{ атом/см}^3$ . В. И. Былыкин и др. отмечают перспективность метода для лазерной спектроскопии трансурановых элементов.

**Электронноскопический анализ СТЭ.\*** Последние успехи электронной микроскопии по снижению аппаратного фона позволили наблюдать отдельные атомы тяжелых элементов. В работе [67] в релятивистском аспекте рассмотрено образование электронами высоких энергий изображений отдельных атомов. Факторы, влияющие на качество изображения, а также его моделирование для атомов F, Ge, Hg исследованы в [68].

Прямое наблюдение атомов Th и U описано в [69]. Показано, что независимо от толщины объекта из ядер с зарядом  $Z$  сигнал, отражающий отношение упруго  $N_{el}$  и неупруго  $N_i$  рассеянных электронов,  $N_{el}/N_i = Z/19$ . Если даже один тяжелый атом находится на тонкой пленке из легких ядер, то отношение сигналов для упруго рассеянных электронов  $N_{el}^{U+C}/N_{el}^C = 1,68$  (где  $N_{el}^{U+C}$  — сигнал от пленки с атомом;  $N_{el}^C$  — сигнал от пленки).

Изготавливались углеродные пленки толщиной  $20 \text{ \AA}$ . Фактор видимости, т. е. отношение упруго и неупруго рассеянных электронов при наличии на пленке атома,  $N_{el}^{U+C}/N_i^{U+C} \approx 1,68 N_{el}^C/N_i^C$ , т. е. как и для упругого рассеяния. В экспериментах, рассмотренных в [69], пучок электронов диаметром  $5 \text{ мкм}$  передвигался по исследуемому образцу и при получении сигнала от отдельного атома пучок автоматически фокусировался на этом участке для получения контрастного изображения.

В заключении статьи [69] говорится, что уменьшение диаметра пучка электронов до  $2 \div 3 \text{ \AA}$  позволит наблюдать отдельные атомы с  $Z = 40$ . В работе [70] получено изображение атомов кристаллов  $2\text{Nb}_2\text{O}_5 \cdot 7\text{NO}_3$  и отдельных атомов золота в кристаллической решетке (рис. 16).

Следовательно, разработанный метод позволит наблюдать отдельные атомы с  $Z \approx 120$  даже при наличии фона атомов U и Th.

**Использование для поиска СТЭ минералов.** Обсудим в заключение использование для поисков СТЭ минералов земного происхождения. Выше и в цитируемых работах рассмотрен выбор минералов, перспективных для поисков СТЭ. Удачный выбор минерала может дать очень высокую степень обогащения. Действительно, при обнаружении на земле  $^{244}\text{Pu}$  [2] содержание в минерале «бастнезит» церия в  $10^6$  раз превышает среднюю распространенность его в земной коре, а обогащение  $^{244}\text{Pu}$  было еще большим, и его содержание оценено примерно как  $1 \cdot 10^{-18} \text{ г/г}$ , что указывает на существование детектируемых количеств природных трансур-

\* Автору стало известно от Д. И. Блохинцева о его работе (и очевидно первой): «Атом в поле зрения электронного микроскопа» («ЖЭТФ», 1947, т. 17, с. 814).

В ней показано, что возможно получить несколько тысяч рассеянных электронов, прежде чем атом будет выбит из занимаемого им места на пленке, т. е. установить наличие одного тяжелого атома.

новых элементов. Период полураспада  $^{244}\text{Pu}$  равен  $\sim 82 \cdot 10^6$  лет, если период полураспада СТЭ сравним с этим, то в некоторых минералах можно ожидать концентрацию  $\sim 10^{-18}$  г/г. В этом случае в 1 т будет содержаться  $10^{-12}$  г СТЭ или при  $A \approx 300$

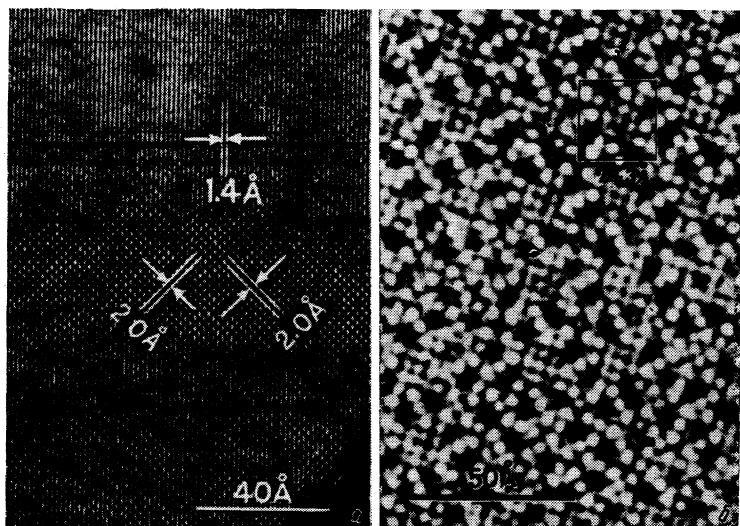


Рис. 16. Электронно-микроскопическое изображение кристаллов  $2\text{Nb}_2\text{O}_5 \cdot 7\text{WO}_3$  (справа) и атомов золота (слева)

около  $2 \cdot 10^9$  атомов. Это, как изложено выше, позволит получить всеми описанными методами однозначные результаты. ■

На основании разд. 2 перспективно использование минералов, содержащих гигантские гало, с первоначальным обогащением, т. е. отделением центров гигантских гало.

Решение важного вопроса о существовании в природе сверхтяжелых элементов, очевидно требует, на основании изложенного, координации усилий специалистов и лабораторий.

В заключение автор рад выразить благодарность Н. Н. Боголюбову за стимулирование интереса к проблеме сверхтяжелых элементов, а также В. И. Данилову, Б. Н. Калинин, О. И. Козинцу и Г. Н. Кулинянову за советы при чтении рукописи.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Seaborg G. T.—“Ann. Rev. Nucl. Sci.”, 1968, v. 18, p. 53.
2. Чечев В. П., Крамаровский Я. М. “Успехи физ. наук”, 1975, т. 116, с. 687.
3. Myers W. D., Swiatecki W. J.—“Nucl. Phys.”, 1966, v. 81, p. 1.
4. Гареев Ф. А., Калинин Б. Н., Собичевски А. Преприят ОИЯИ, Р-2793.

5. Fink B., Mosel U. Memorandum Hessischer Kernphysiker Phys. Lett., 1966, v. 22, p. 500. Dormstadt, 1966. Fink B. e.a.—“Z. Phys.”, 1969, Bd 228, S. 371.
6. Mosel U., Greiner W.—“Z. Phys.”, 1968, Bd 217, S. 1260.
7. Nilsson S. G. e.a.—“Nucl. Phys.”, 1968, v. 115, p. 545; 1969, v. 131, p. 1.
8. Чепурнов В. А.—“Ядерная физика”, 1967, т. 6, с. 955.
9. Клейтон Д. Д.—«УФН», 1969, т. 99, с. 439.
10. Schramm D., Norman E. 3-th Intern. Conf. on Nucl. far from Stability. Corsica, 1976, p. 570.
11. Айзенберг И., Грейнер В. Микроскопическая теория ядра. Пер. с англ. Т. 2, М., Атомиздат, 1976.
12. Howard W. M.—“Physica Scripta A”, 1974, v. 10, p. 138.
13. Sobiczewski A.—“Physica Scripta A”, 1974, v. 10, p. 47.
14. Nix J. R.—“Ann. Rev. Nucl. Sci.”, 1972, v. 22, p. 65.
15. Herrman C.—“Phys. Scripta A”, 1974, v. 10, p. 71.
16. Nilsson S. G. In: Proc. Inter. Conf. on Properties of Nucl. Math. Montreal, 1969, p. 149.
17. Anders E., Humann D.—“Science”, 1969, v. 64, p. 821.
18. Anders E. e.a.—“Science”, 1975, v. 190, p. 1262.
19. Schramm D.—“Nature”, 1971, v. 233, p. 258.
20. Rao M. N.—“Nucl. Phys. A”, 1970, v. 140, p. 69.
21. Alexander E. C. e.a.—“Science”, 1971, v. 172, p. 837.
22. Joly J.—“Phil. Mag.”, 1907, Bd 13, S. 381, 83; Mügge O.—“Z. Mineral”, 1907, Bd 397, S. 99.
23. Gentry R. V.—“Ann. Rev. Nucl. Sci.”, 1973, v. 22, p. 347.
24. July J., Rutherford E.—“Phil. Mag.”, 1913, v. 25, p. 644.
25. Gentry R. V.—“Science”, 1968, v. 160, p. 1228.
26. Hirschi H.—“Virteljahresschr Naturforsch. Ges. Zuerich”, 1920, Bd 65, S. 209.
27. Wiman E.—“Bull. Geol. Inst. Univ. Uppsala”, 1930, v. 23, p. 1.
28. Gentry R. V.—“Science”, 1970, v. 169, p. 670.
29. Picciotto E. E., Deutsch S. Plochroic Halos Comitato Nazionale per Energia Nucleare.
30. Флеров Г. Н., Перельгин В. П.—“Атомная энергия”, 1969, т. 26, с. 520. j
31. Price P. V. e.a.—“Phys. Rev. C”, 1970, v. 1, p. 1819.
32. Флеров Г. Н., Отгонсурен О., Перельгин В. П.—“Атомная энергия”, 1972, т. 33, с. 979; Сообщение ОИЯИ Р7-6495, 1972.
33. Cheifetz E. e.a.—In: Proc. of Leysin Conf. Switzerland, 1970, p. 709.
34. Popeko A. G. e.a.—“Phys. Lett B”, 1974, v. 52, p. 417.
35. Nix J. R.—“Phys. Lett. B”, 1969, v. 30, p. 1.
36. Флеров Г. Н.— В кн.: Международная конференция по избранным вопросам структуры ядер. Дубна, 1976, с. 9.
37. Флеров Г. Н., Тер-Акопян Г. М. и др. Сообщение ОИЯИ Р6-10581, 1977.
38. Звара И., Флеров Г. Н. и др. Сообщение ОИЯИ Р6-10589, 1977.
39. Stoughton R. W. e.a.—“Nature”, 1973, v. 246, p. 26.
40. Reist H. W. e.a.— В кн.: Международная конференция по физике тяжелых ионов. Дубна, 1971. Д7-5769.
41. Bechringer K. e.a.—“Phys. Rev. C”, 1974, v. 48.
42. Sowinski M. e.a.— В кн.: Международная конференция по физике тяжелых ионов. Дубна, 1971. Д7-5769, с. 79.
43. Stephan C. e.a.—“J. Phys.”, 1975, v. 36, p. 105.
44. Fowler P. H. e.a.—“Proc. Roy. Soc. A”, 1970, v. 319, p. 1; Price P. V. e.a.—“Phys. Rev. D”, 1971, v. 3, p. 815.
45. Price P. V., Fleischer R. L.—“Ann. Rev. Nucl. Sci.”, 1971, v. 21, p. 295.
46. Отгонсурен О., Перельгин В. П. Сообщение ОИЯИ Р7-7406, 1973.
47. Перельгин В. П. и др. Сообщение ОИЯИ Р7-10221, 1976.
48. Отгонсурен О. и др.—“Докл. АН СССР”, 1969, т. 189, с. 1200.

49. Grimm W. e.a.—“Phys. Rev. Lett.”, 1971, v. 26, p. 1408; Cheifetz E. e.a.—“Phys. Rev. C”, 1972, v. 6, p. 1348.
50. Gentry R. V. e.a.—“Phys. Rev. Lett.”, 1976, v. 37, p. 11.
51. Carlson T. A. e.a.—“Nucl. Phys. A”, 1969, v. 135, p. 57.
52. Lu C. C. e.a.—“Nucl. Phys. A”, 1971, v. 175, p. 289.
53. Wyrick R. K.—“Phys. Rev. A”, 1973, v. 8, p. 2288.
- 54a. Wölflü W. e.a.— В кн.: Европейская конференция по ядерной физике с тяжелыми ионами. Кан, сентябрь 1976.
- 54b. Sparks C. e. a.—“Phys. Rev. Lett.”, 1977, v. 38, p. 205.
55. Stephan C. e.a.—“Phys. Rev. Lett.”, 1976, v. 37, p. 1534.
56. Ketelle V. H. e.a.—“Phys. Rev. Lett.”, 1976, v. 37, p. 1734.
57. Бончев Цв., Пенева Св.— В кн.: Международная конференция по физике тяжелых ионов. Дубна, 1971. Д7-5769, с. 115.
58. Таблицы физических величин. Под ред. И. К. Кикоина. Справочник. М., Атомиздат, 1976.
59. Ягодин Г. Я. и др. Технология редких металлов в атомной технике. М., Атомиздат, 1974, с. 117.
60. Heutenberger H.—“Ann. Rev. Nucl. Sci.”, 1962, p. 435.
61. Anholt R., Rasmussen J. O.—“Phys. Rev. A”, 1974, v. 9, p. 585.
62. Bemis C. E. e.a. Международная конференция по тяжелым ионам. Дубна, 1971, Д7-5769, с. 175.
63. Mokler P. H. e.a.—“Phys. Rev. Lett.”, 1972, v. 29, p. 827.
64. Авашин В. В., Будкер Г. И. и др. Накопители ВЭПП-2М и ВЭПП-3 — источники синхротронного излучения. Доклад на 5-м Всесоюзном совещании по ускорителям. Дубна, 1976.
65. Мокульская Т. Д. и др. Препринт ИАЭ-2385, 1974.
66. Балыкин В. И. и др.—“Письма ЖЭТФ”, 1975, т. 24, с. 475.
67. Булынин А. П., Воробьев Ю. В.—“Оптика и спектроскопия”, 1971, т. 30, с. 1164.
68. Верцнер В. В.—“Изв. АН СССР. Серия физ.”, 1974, т. 38, с. 2243.
69. Крю А. e.a.—“Science”, 1970, v. 168, p. 1338.
70. “JEOL News”, 1975, v. 13, p. 29.