

P15-2012-63

А. Ю. Дидык, Р. Вишневский*

ЯДЕРНЫЕ РЕАКЦИИ В НАСЫЩЕННОМ
ДЕЙТЕРИЕМ ПАЛЛАДИИ И РЕНИИ
В АТМОСФЕРЕ ПЛОТНОГО ДЕЙТЕРИЯ
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ γ -КВАНТАМИ
НЕПРЕРЫВНОГО СПЕКТРА
С ГРАНИЧНОЙ ЭНЕРГИЕЙ 23 МэВ

Направлено в журнал «Письма в ЭЧАЯ»

*Национальный центр ядерных исследований, Отвоцк, Польша

Дидык А. Ю., Вишнеvский Р.

P15-2012-63

Ядерные реакции в насыщенном дейтерием палладии и рении в атмосфере плотного дейтерия при облучении γ -квантами непрерывного спектра с граничной энергией 23 МэВ

Проведены исследования элементного состава образцов палладия и рения, облученных в плотном газообразном дейтерии γ -квантами непрерывного спектра с пороговой энергией 23 МэВ. Обнаружены значительные аномалии в структуре облученных образцов и их элементном составе. На обоих концах Pd-проволоки обнаружены значительные изменения с выбросами (типа застывших в «полете солнечных протуберанцев») расплавленного металла со сложным элементным составом. Поверхность палладия оказалась покрытой мелкими, примерно 1–2 мкм, частицами, состоящими, по-видимому, из оксида рения Re_2O_7 , а вблизи трещин и разломов присутствующими в виде кристаллитов из рения, углерода и кислорода с гексагональной симметрией. Вся поверхность рения потрескалась и покрылась толстым слоем из соединения углерода с рением типа Re_xC_y . Приведена феноменологическая модель ядерных реакций, приводящих к элементному составу и рения, и палладия.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2012

Didyk A. Yu., Wiśniewski R.

P15-2012-63

Nuclear Reactions in Palladium Saturated with Deuterium and Rhenium in Dense Deuterium Gas under Irradiation by γ -Quanta of Continuous Spectrum with Boundary 23 MeV Energy

Elemental composition studies of Pd and Re samples irradiated by γ -quanta in dense deuterium gas of continuous spectrum with the boundary 23 MeV energy were carried out. Significant anomalies in the structure and chemical composition are obtained. Considerable changes are observed at both ends of the Pd and Re wire as blowouts of molten metal with complex element composition, resembling congealed Solar protuberances. The cracky surfaces of the Pd and Re wires were covered with 1–2 μm particles predominantly composed of rhenium oxide Re_2O_7 . These particles had been crystallized into small hexagonal crystallites near the cracks in the palladium. The rhenium surface was covered by a thick layer with a large carbon concentration. A short description of the phenomenological model of nuclear reactions leading to the observed anomalies is presented.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2012

ВВЕДЕНИЕ

В предыдущих работах авторов [1–6] был разработан принципиально новый подход к изучению ядерных реакций в дейтерированных материалах, насыщенных атомарным дейтерием вплоть до стехиометрического состава [7, 8], а также к созданию новых структур в плотном газообразном дейтерии в металлах. Данный подход основан на применении: специализированных камер высокого давления дейтерия (СКВДД, см. [6]), способных сохранять в течение длительного времени молекулярный дейтерий в газообразном состоянии, находящийся под давлением в диапазоне до 3–4 кбар; СКВДД, заполненных плотным газообразным молекулярным дейтерием, где размещаются металлические или неметаллические образцы и специальные сборники синтезированных структур. Облучение СКВДД осуществляется потоком γ -квантов с непрерывным спектром по энергии, получаемых на вольфрамовой тормозной мишени электронными пучками с энергиями 10–25 МэВ.

Цель работы — выяснение особенностей протекания ядерных реакций в чистых металлах, находящихся в плотном газообразном дейтерии или насыщенных дейтерием при высоких давлениях при воздействии тормозных γ -квантов с граничной энергией 23 МэВ, то есть в области гигантского дипольного резонанса.

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Образцы из Pd (99,96 %) в виде проволоки с диаметром 1 мм и длиной 110,7 мм и Re (99,97 %) в виде трех отрезков проволок с диаметром в 1 мм при длинах 12,5 мм, 24,5 мм и 33,0 мм были помещены в камеру СКВДД с давлением газообразного дейтерия в 2860 бар. Облучение всех образцов было проведено на электронном ускорителе МТ-25 электронами с энергией 23,5 МэВ при среднем токе пучка электронов 11–12 мкА в течение 17,5 ч чистого ускорительного времени. Следовательно, время облучения составило $T = 6,3 \cdot 10^4$ с.

На рис. 1 представлена схема СКВДД, предназначенная для облучения γ -квантами серий образцов в виде проволочек и цилиндров из различных материалов с относительно малыми диаметрами.

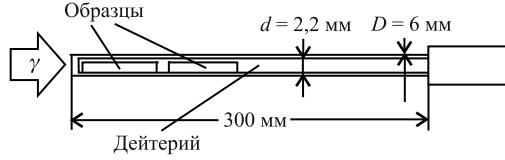


Рис. 1. Схема СВВД для облучения материалов

Необходимо отметить, что в отличие от первого эксперимента, который детально описан в работах [1–5] и где использовалась СВВД-камера, запатентованная в работе [6], в данном эксперименте стенки камеры СВВД, созданной по иному проекту, состоят из нержавеющей стали ОХ18Н10 с тем, чтобы исключить такие химические элементы, которые присутствовали в первом эксперименте, как медь и цинк. Именно эти элементы присутствовали в разрушенном слое толщиной более 80 мкм в палладию в первом эксперименте [1–5].

Толщина W тормозной мишени была выбрана равной 3 мм, а Al-поглотитель электронов имел толщину 25 мм. Следовательно, расстояние до первого образца из Pd и двух образцов из Re (24,5 мм и 33 мм), расположенных параллельно Pd-образцу, с учетом толщины входного окна из нержавеющей стали (~ 4 мм) составляло $L_1 = 32$ мм.

Отметим достоинства и недостатки такого расположения образцов в СВВД-камере.

1. Камера имеет значительную длину $L_{\text{СВВД}} = 30$ см, что позволяет, используя пучок γ -квантов, легко изменять плотность потока в соответствии с зависимостью потока от расстояния от тормозной мишени до образца — $L = L_1 + R$, где R — расстояние от задней стенки входной диафрагмы в СВВД до передней поверхности облучаемого образца:

$$n_{\gamma}(E_{\gamma}, R) = S_0 \cdot N_{\gamma}^0(E_{\gamma})/L^2; \quad (1)$$

$N_{\gamma}^0 \equiv \frac{\partial^2 N}{\partial \Theta \partial E_{\gamma}}$ — выход тормозного излучения вперед, $\text{МэВ}^{-1} \cdot \text{ср}^{-1} \cdot \text{электрон}^{-1}$, с угловой расходимостью примерно $\Theta \approx 8-10^0$, который рассчитан для ускорителя МТ-25 Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова и используемой в эксперименте энергии электронов (23 МэВ) и геометрии в работах [2–4]. Параметр $S_0 = 3,8 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2$ представляет собой площадь входного окна.

2. При этом следует учитывать, что плотность потока γ -квантов для длинных образцов будет изменяться по их длине и средняя плотность потока через

длинный образец (с длиной $L_{\text{обр}}$) нужно оценивать из выражения

$$\overline{n}_{\gamma}(E_{\gamma}, L, L_{\text{обр}}) = S_0 \cdot N_{\gamma}^0(E_{\gamma}) \frac{1}{L_{\text{обр}}} \int_L^{L+L_{\text{обр}}} \frac{dR}{R^2} \approx \frac{S_0 \cdot N_{\gamma}^0(E_{\gamma})}{(L_{\text{обр}} + L)L}. \quad (2)$$

Следовательно, можно за одно облучение получить различные плотности потоков γ -квантов и дозы облучения*. Например, если образцы имеют длину в $L_{\text{обр}} = 1$ см, то отношение плотностей потоков на этих образцах при их расположении вблизи входного окна и на максимальном удалении от него составит $L_2^2/L_1^2 = 31,8^2/3,2^2 = 98,75$. Сравним теперь соотношения наведенных активностей на Re-образцах, которые располагались параллельно Pd-образцу (см. рис. 1) в последовательности: 24,5 мм — 1-й, 33,0 мм — 2-й и 12,5 мм — 3-й. Через четыре месяца после облучения наведенная активность составила: 1-й (24,5 мм) — 15,5 мЗв/ч и 2-й (33,0 мм) — 10,6 мЗв/ч и 3-й (12,5 мм) — 1,9 мЗв/ч. Тогда наведенная активность в образцах, приведенная к единице их длины или массы, составляет 0,62 мЗв/мм/ч, 0,32 мЗв/мм/ч и 0,15 мЗв/мм/ч. Принимая значение 0,62 мЗв/мм/ч за 1,0, для остальных значений имеем 0,5 и 0,2. Расчет с использованием выражения (2) дает следующие приведенные значения наведенной активности: 1,0, 0,4 и 0,2. Как видно, приближенная формула (2) описывает значения наведенной активности Re-образцов. Тем самым можно проводить исследования воздействия γ -квантов, процессов фоторасщепления дейтронов и последующих реакций деления ядер средних масс в образцах, насыщенных дейтерием, и синтеза новых структурных образований (СНО) из продуктов деления ядер [1–5], располагая образцы по длине камеры СКВДД.

3. Тем не менее применение разнородных материалов при их одновременном размещении в СКВДД, как и материалов, входящих во внутренние стенки камеры, наряду с несомненными достоинствами, значительно затрудняет анализ результатов ядерных реакций.

Перед открыванием СКВДД (рис. 1) в ней было измерено давление, которое оказалось равным 2860 бар, то есть практически таким же, как при наполнении СКВДД восемью месяцами ранее. Образцы, находящиеся в камере Pd (99,96 %) (проволока длиной 110 мм и диаметром 1 мм) и Re (99,97 %) в виде трех отрезков проволок с длинами 12, 25 и 33 мм и диаметром 1 мм удалось извлечь только через три дня, т. е., по-видимому, только после десорбции дейтерия из них. Образцы оказались, как и сама СКВДД, сильноактивированными, что позволило проводить рентгеновский микроэлементный

*В выражения (1) и (2) следует добавить множитель, учитывающий поглощение γ -квантов в самом образце в виде $\exp[-\lambda L_{\text{обр}}]$, λ — коэффициент поглощения.

анализ только после длительного времени их «высвечивания»: для палладиевых образцов — четыре полных месяца, а для образцов из рения — более восьми месяцев. Как и в серии предыдущих работ [2–4], изучение структуры образцов и элементного состава в них было проведено с применением сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) и рентгеновского микроэлементного анализа (РМА).

1.1. Экспериментальные результаты для Pd-проволоки (110,7 мм длины). На рис.2 представлено СЭМ-изображение места входа (а) и выхода (б) γ -квантов для Pd-проволоки длиной 12,5 мм.

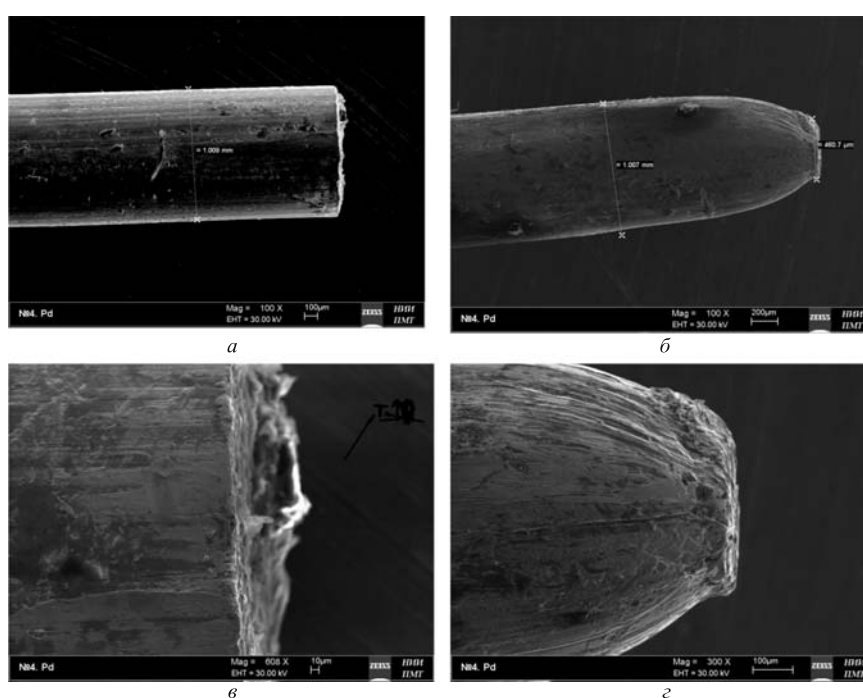


Рис. 2. СЭМ-изображения левого (а) и правого (б) концов Pd-проволоки и СЭМ-изображения с большим увеличением (x608, в — левый) и (x300, г — правый)

Видно, что правый край образца претерпел значительные изменения, а именно образовалось удлиненная часть, сужающаяся к концу от 1 мм в диаметре до 0,461 мм в диаметре с сильно деформированным краем шириной примерно 100 мкм. Как на левом (а), так и на правом (б) концах проволоки заметны более мелкие неоднородности в виде застывших выбросов из поверхностей.

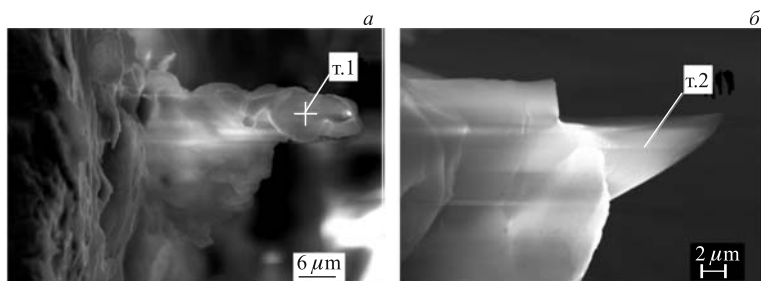


Рис. 3. Два «замороженных» выброса со стороны входа γ -квантов в левый торец Pd-проволоки

Таблица 1

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 1		Точка 2	
			вес. %	%	вес. %	%
C	6	K	—	—	65,24	76,22
O	8	K	15,24	27,95	18,04	15,77
Na	11	K	—	—	0,88	0,53
Mg	12	K	2,22	2,68	0,45	0,26
Al	13	K	50,18	54,56	12,06	6,26
Si	14	K	3,14	3,28	0,14	0,07
S	16	K	1,04	0,95	0,11	0,05
Cl	17	K	0,50	0,41	0,48	0,19
K	19	K	1,89	1,42	0,44	0,16
Ca	20	K	0,71	0,52	0,09	0,03
Cr	24	K	0,96	0,54	0,30	0,08
Mn	25	K	0,63	0,33	0,06	0,02
Fe	26	K	4,51	2,37	1,37	0,34
Ni	28	K	—	—	0,10	0,02
Cu	29	K	4,05	1,87	0,05	0,01
Zn	30	K	2,29	1,03	—	—
Pd	46	L	0,83	0,23	—	—
Re	75	L	11,82	1,86	—	—

Две структуры типа «замороженных протуберанцев» представлены на рис. 3, *a* в виде двух выбросов с Pd-поверхности в направлении, обратном направлению потока γ -квантов.

В табл. 1 представлены концентрации элементов в точках 1 и 2 (рис. 3), соответственно.

Как видно из табл. 1, как и в эксперименте, результаты которого представлены в работах [1–5], в результате ядерных реакций происходит образование продуктов деления палладия в виде меди (^{29}Cu — 1,87 ат.%) и цинка (^{30}Zn — 1,03 ат.%). Как видно также из табл. 1, в результате ядерных реакций в палладии происходит образование легких химических элементов: ^{12}Mg , ^{13}Al , ^{14}Si , ^{16}S , ^{17}Cl , ^{19}K и ^{20}Ca , и более тяжелых, таких как ^{24}Cr , ^{25}Mn , ^{26}Fe , а также присутствуют ^{29}Cu и ^{30}Zn . На последние два элемента обратим особое внимание, именно эти два химических элемента были обнаружены в значительных количествах на поверхности Pd-цилиндра в работах [1–5]. Для

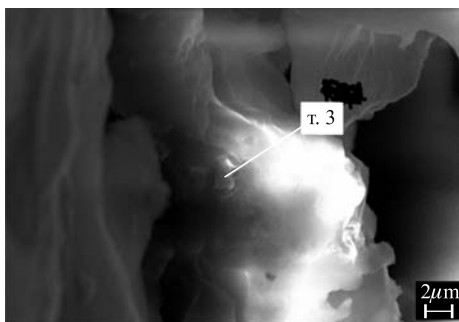


Рис. 4. СЭМ-изображение «основания» кристаллической структуры на поверхности со стороны проникновения γ -квантов (рис. 3, *б*)

Таблица 2

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 3		
			вес. %	Ошибка, вес. %	ат. %
C	6	K	48,31	7,91	66,42
O	8	K	14,30	2,90	14,76
F	9	K	7,52	1,56	6,28
Na	11	K	1,61	0,18	1,16
Al	13	K	12,99	0,78	7,95
Cl	17	K	0,24	0,04	0,11
K	19	K	3,45	0,16	1,46
Ca	20	K	0,58	0,05	0,24
Cr	24	K	0,47	0,05	0,15
Fe	26	K	2,52	0,11	0,75
Re	75	L	8,32	0,29	0,74

проверки протекания ядерных реакций в Pd с образованием ^{29}Cu и ^{30}Zn все материалы, содержащие в предыдущей СКВДД эти элементы, были заменены на нержавеющую сталь (см. рис. 1).

На рис. 4 представлено СЭМ-изображение «основания» кристаллической структуры (рис. 3, б) на поверхности со стороны проникновения γ -квантов.

В табл. 2 приведен элементный состав этого «основания» в точке 3 (рис. 4).

На рис. 5 представлены фотографии двух выбросов с поверхности Pd-торца в направлении, совпадающем с направлением потока γ -квантов.

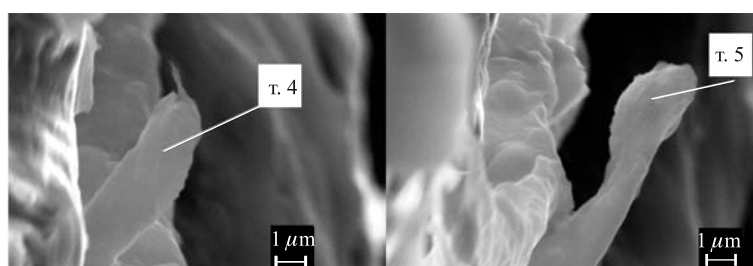


Рис. 5. Два «замороженных» выброса со стороны выхода γ -квантов из правого торца Pd-проволоки

Таблица 3

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 4		Точка 5	
			вес. %	ат. %	вес. %	ат. %
C ⁶	6	K	30,40	47,58	—	—
O ⁸	8	K	9,52	11,42	10,82	18,19
Na	11	K	—	—	1,36	1,59
Mg	12	K	1,32	1,02	1,67	1,85
Al	13	K	55,14	38,42	68,73	58,55
Si	14	K	0,37	0,45	1,58	1,51
S	16	K	0,11	0,07	0,29	0,25
Cl	17	K	0,74	0,39	0,77	0,58
K	19	K	0,43	0,20	0,64	0,44
Ca	20	K	0,27	0,13	5,74	3,86
Cr	25	K	0,29	0,10	0,83	0,43
Mn	25	K	0,36	0,12	0,58	0,28
Fe	26	K	0,82	0,28	2,20	1,06
Ni	28	K	0,02	0,01	0,95	0,44
Pd	46	L	—	—	3,84	0,97

В табл. 3 представлены элементные составы выступов в точках 4 и 5 (рис. 5).

Как видно, элементный состав выбросов представляет собой набор элементов более легких, чем палладий. Более того, этот набор элементов далеко не случаен, а укладывается в ядерные реакции при делении изотопов палладия, которые описаны в работах [3, 5]. Атомы легких химических элементов, такие как ^{11}Na , ^{12}Mg , ^{13}Al , ^{14}Si , ^{16}S , ^{17}Cl , ^{19}K , ^{20}Ca , ^{24}Cr , ^{25}Mn , ^{26}Fe , ^{28}Ni , обладают большей летучестью, чем атомы тяжелых химических элементов типа Pd^{46} , поэтому концентрация палладия так мала или он вообще отсутствует (см. табл. 2, 3) в химическом составе застывшего выброса из поверхности. Скорость испарения частиц с поверхностного слоя, введенная в работе [9], имеет вид

$$\frac{dn}{dt} = N \left(\frac{kT}{2\pi M} \right)^{1/2} \exp \left[-\frac{U_0}{kT} \right], \quad (3)$$

где N , k , T , M , и U_0 — атомная плотность частиц в жидкой фазе, константа Больцмана, температура на поверхности, масса вылетающей частицы и энергия связи частицы с поверхностью соответственно.

На рис. 6 представлено СЭМ-изображение поверхности вблизи сужающейся части (рис. 2, б, г) с двумя участками, в которых был проведен РМА-анализ.

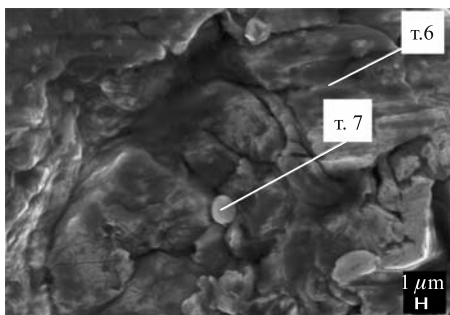


Рис. 6. СЭМ-изображение участка поверхности вблизи сужающейся части на рис. 2, б, г

В табл. 4 представлен элементный состав в указанных на рис. 4 точках 6 и 7.

В табл. 4 (точка 6) концентрация палладия достаточно высока, тем не менее присутствуют железо, никель и хром, причем соотношение этих элементов близко к элементному составу нержавеющей стали ОХ18Н10, из которой состоит стенка СКВДД, а именно: Fe — 60,4%; Cr — 30,5%; Ni — 9,0%, хотя измеренная концентрация этих элементов и отличается от состава

Таблица 4

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 6		Точка 7	
			вес. %	ат. %	вес. %	ат. %
C	6	K	—	—	13,15	37,76
O	8	K	—	—	6,60	14,24
Mg	12	K	—	—	1,13	1,61
Al	13	K	5,18	17,29	0,46	0,62
Si	14	K	—	—	0,39	0,48
Cr	24	K	0,93	1,60	0,57	0,38
Fe	26	K	1,97	3,17	62,15	38,39
Ni	28	K	0,31	0,47	2,53	1,49
Cu	29	K	—	—	3,72	2,02
Pd	46	L	81,61	77,46	9,27	3,01

исходной конструкционной нержавеющей стали. Кроме того, присутствуют в значительных количествах алюминий (17,29 ат. %) и медь (2,02 ат. %). Анализ частицы, расположенной на поверхности Pd-проволоки (в точке 7), обнаружил высокое содержание железа (38,39 ат. %) и углерода (37,76 ат. %).

На рис. 7 представлено СЭМ-изображение поверхности вблизи сужающейся части (рис. 2, б, г) с двумя участками, на которых был проведен РМА-анализ.

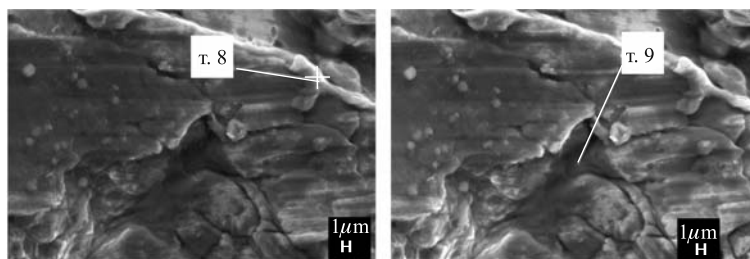


Рис. 7. СЭМ-изображение участка поверхности вблизи сужающейся части на рис. 2, б, г

В табл. 5 представлен элементный состав в указанных на рис. 7 точках 8 и 9.

Как видно, наряду с относительно высокой концентрацией палладия присутствует в значительных количествах и углерод, как и на предыдущем промеренном участке поверхности (${}^6\text{C}$ — 37,25 ат. %). Здесь так же как и в застывших выбросах (рис. 3, 5), имеется даже большее разнообразие легких атомов химических элементов: ${}^6\text{C}$ (43,80 ат. %), ${}^7\text{N}\uparrow(?)$, ${}^8\text{O}$, ${}^9\text{F}$, ${}^{10}\text{Ne}\uparrow(?)$,

Таблица 5

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 8		Точка 9	
			вес. %	ат. %	вес. %	ат. %
C	6	K	6,42	37,25	17,17	43,80
O	8	K	—	—	14,38	27,54
F	9	K	—	—	3,37	5,44
Na	11	K	—	—	0,82	1,03
Al	13	K	0,42	1,08	0,69	0,79
Si	14	K	—	—	0,40	0,44
P	15	K	—	—	0,26	0,26
Ca	20	K	—	—	0,93	0,71
Cr	24	K	0,39	0,52	—	—
Mn	25	K	—	—	0,18	0,10
Fe	26	K	0,66	0,82	0,33	0,18
Pd	46	L	92,11	60,32	59,52	17,14

^{11}Na , ^{12}Mg , ^{13}Al , ^{14}Si , ^{15}P , ^{16}S , ^{17}Cl , $^{18}\text{Ar}\uparrow(?)$, ^{19}K , ^{20}Ca , ^{25}Mn , ^{26}Fe и ^{46}Pd . Как видно, присутствуют все химические элементы, начиная с $Z = 6$ (^6C) $Z = 20$ (^{20}Ca). Здесь символом $\uparrow(?)$ помечены летучие элементы, которые невозможно зарегистрировать в несвязанном состоянии с помощью микро-элементного анализа.

На рис. 8 представлены СЭМ-изображения двух участков поверхности, также вблизи сужающейся части (рис. 2, б, в) с двумя частицами на Pd-поверхности, которые и были проанализированы РМА-анализом.

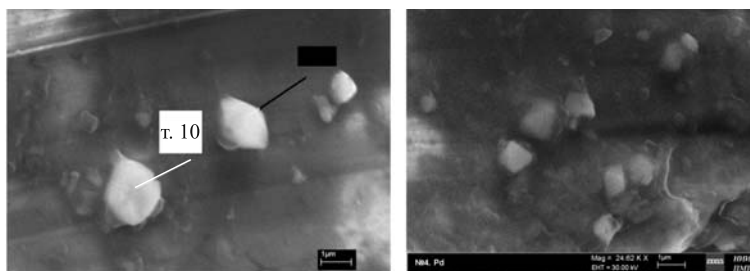


Рис. 8. СЭМ-изображения двух участков поверхности вблизи сужающейся части на рис. 2, б, в с инородными частицами

В табл. 6 представлен элементный состав в указанной на рис. 8 точке 10.

Отметим, что все инородные частицы на обоих изображениях имеют примерно одинаковый состав, а именно все они содержат значительное количе-

Таблица 6

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 10	
			вес. %	ат. %
O	8	K	21,52	64,08
Na	11	K	1,04	2,15
K	19	K	4,22	5,14
Fe	26	K	0,90	0,77
Pd	46	L	48,75	21,83
Re	75	L	23,58	6,03

ство до 6,03 ат. % рения. Причем так как эти частицы достаточно малы, с размерами до 1–2 мкм, то при РМА-анализе естественно анализируется и область вокруг этих частиц, и под ними тоже. Это могло «увеличить» концентрацию палладия. Эти частицы, скорее всего, являются легкоплавким оксидом рения, а именно Re_2O_7 с температурой плавления около 200 °С. Помимо Re присутствует значительная концентрация кислорода O (64,08 ат. %). Как известно, оксид рения Re_2O_7 образуется при температурах выше 150 °С при значительном избытке кислорода. Температура кипения Re_2O_7 362,4 °С.

На рис. 9 представлены два СЭМ-изображения трещины и мелких микрокристаллов на боковой поверхности Pd-провода.

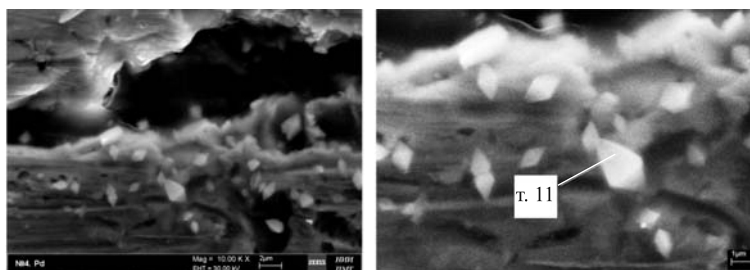


Рис. 9. СЭМ-изображения трещины и микрокристаллов на боковой поверхности Pd-провода

В табл. 7 представлен элементный состав монокристалла в точке 11.

Ясно, что ввиду малого размера проанализированного кристалла примерно 1,5 мкм на 2 мкм и его относительно малой толщины элементный анализ проводится с захватом значительно большего элемента объема, чем объем кристалла. Но даже с учетом этого атомная концентрация рения достигает 6,61 ат. %.

Таблица 7

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 11		
			вес. %	Ошибка, %	ат. %
O ⁸	8	K	28,60	4,12	72,12
Na ¹¹	11	K	0,54	0,07	0,95
Al ¹³	13	K	0,42	0,05	0,63
S ¹⁶	16	K	0,19	0,04	0,23
Cl ¹⁷	17	K	0,12	0,03	0,14
K ¹⁹	19	K	5,60	0,06	5,77
Mn ²⁵	25	K	0,76	0,06	0,56
Fe ²⁶	26	K	1,09	0,07	0,79
Pd ⁴⁶	46	L	32,19	1,01	12,20
Re ⁷⁵	75	L	30,50	0,77	6,61

Представляет особый интерес анализ элементного состава в трещинах, которые образовались в палладиевой проволоке. Именно там, где имеются значительные нарушения структуры, эти области и испытывали самые значительные температурные перегревы и связанные с этим механические напряжения. И, следовательно, в них и протекали ядерные реакции деления со значительными выделениями энергии. На рис. 10 представлено изображение трещины и микрокристаллов на боковой поверхности Pd.

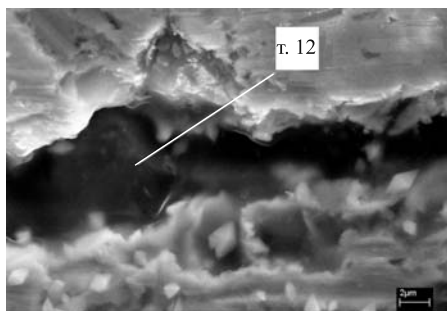


Рис. 10. СЭМ-изображения трещины и гексагональных микрокристаллов на боковой поверхности Pd-проволоки и место проведения РМА-анализа на дне трещины

Таблица 8

Элемент	Z	Серия X-ray	Точка 12		
			вес. %	Ошибка, %	ат. %
O	8	K	29,59	3,58	55,11
Al	13	K	0,62	0,06	0,69
Si	14	K	25,35	0,90	26,89
S	16	K	1,11	0,07	1,03
Cl	17	K	1,09	0,06	0,91
K	19	K	1,65	0,07	1,26
Ca	20	K	2,42	0,09	1,80
Mn	25	K	1,48	0,06	0,80
Fe	26	K	4,23	0,12	2,26
Ni	28	K	0,68	0,05	0,34
Zn	30	K	0,74	0,05	0,34
Pd	46	L	30,05	0,79	8,41
Pt	78	L	0,99	0,06	0,15

В табл. 8 представлен приближенный элементный состав со дна трещины в точке 12.

Ясно, что элементный анализ со стенок трещины недостаточно достоверен, но здесь и не ставится цель определения концентраций элементов с высокой точностью. Как видно, присутствует значительное количество кремния (Si — 26,89 ат. %) в сочетании с кислородом (O — 51,11 ат. %).

1.2. Экспериментальные результаты в Re-проволоке длиной 12 мм.

Сразу отметим, что проведение СЭМ- и РМА-исследований было возможно только на Re-проволоке длиной 12,5 мм, так как она располагалась на расстоянии 110 мм (за Pd-проволокой) от задней стенки входного окна камеры СКВДД, имела наименьший размер и, следовательно, приобрела наименьшую наведенную активность. Остальные два Re-образца (с 25-мм и 33-мм длиной) для проведения исследований пока не доступны ввиду их значительной активации и медленного спада наведенной активности.

На рис. 11, *a* и *б* представлены СЭМ-изображения места входа γ -квантов (*a*) и обратная сторона проволоки (*б*) соответственно.

На рис. 12 представлено СЭМ-изображение участка поверхности Re-проволоки с длиной 12 мм вблизи трещины, а усредненный РМА-анализ проводился по выделенным трем участкам поверхности, результат для которых представлен в табл. 9.

В табл. 9 приведены результаты РМА-анализа для трех выделенных площадей.

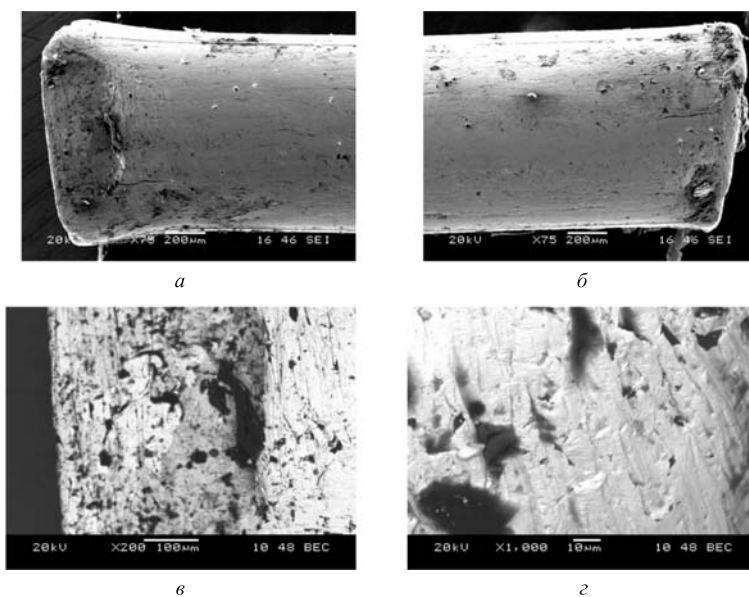


Рис. 11. Две стороны Re-проволоки, *a* — место входа γ -квантов, *b* — обратная сторона, *c, d* — то же с большим увеличением

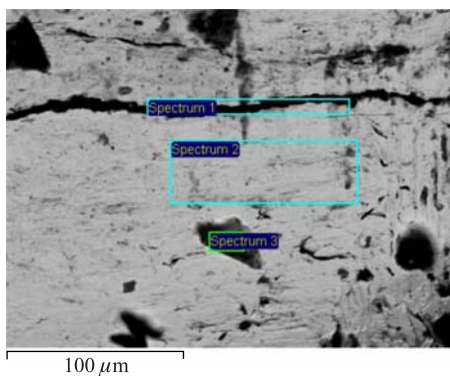


Рис. 12. Структура поверхности Re-проволоки с выделением участков, на которых был проведен РМА-анализ

Как видно, вся поверхность рения покрыта слоем из углерода, при этом концентрация углерода достигает 80,94 ат. % при концентрации рения только 4,92 ат. % и при относительно высокой концентрации осмия до 0,84 ат. %.

Таблица 9

Спектр	Элемент						
	C ⁶	O ⁸	S ¹⁶	K ¹⁹	Fe ²⁶	Re ⁷⁵	Os ⁷⁶
Исходный	–	–	–	–	–	100	–
1	65,65	17,44	–	–	–	16,07	0,84
2	80,94	13,35	0,25	0,10	0,16	4,92	0,28
3	72,95	14,37	–	–	–	11,91	0,77

Как и ранее, интересно оценить концентрации наработанных примесей от ядерных реакций из наиболее деструктурированных объемов, а именно из трещин, одна из которых представлена на рис. 13.

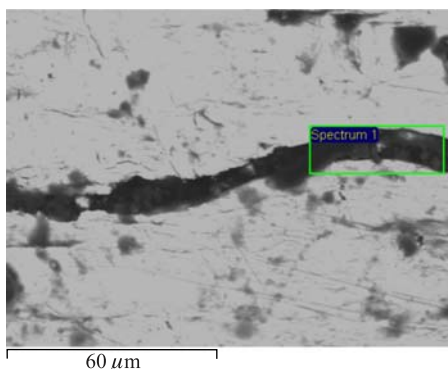


Рис. 13. СЭМ-изображение трещины и участка, на котором проведен усредненный микроэлементный анализ

Таблица 10

Область	Элемент					
	⁶ C	⁸ O	¹² Mg	¹⁶ S	²⁰ Ca	⁷⁵ Re
Спектр 1	72,22	18,9	0,87	0,39	1,15	6,48

В табл. 10 приведен соответствующий элементный состав в выделенной области (ат. %).

Как и в табл. 9, очень высокая концентрация углерода в области из и вблизи трещины.

Приведем все же результаты исследования структуры на двух других Re-проводах, которые были облучены до более высоких флюенсов γ -квантов (см. разд. 1 и пояснения к выражениям (1) и (2)). На рис. 14 представлено изображение двух концов Re-проводов с длинами 24,5 и 33,0 мм.

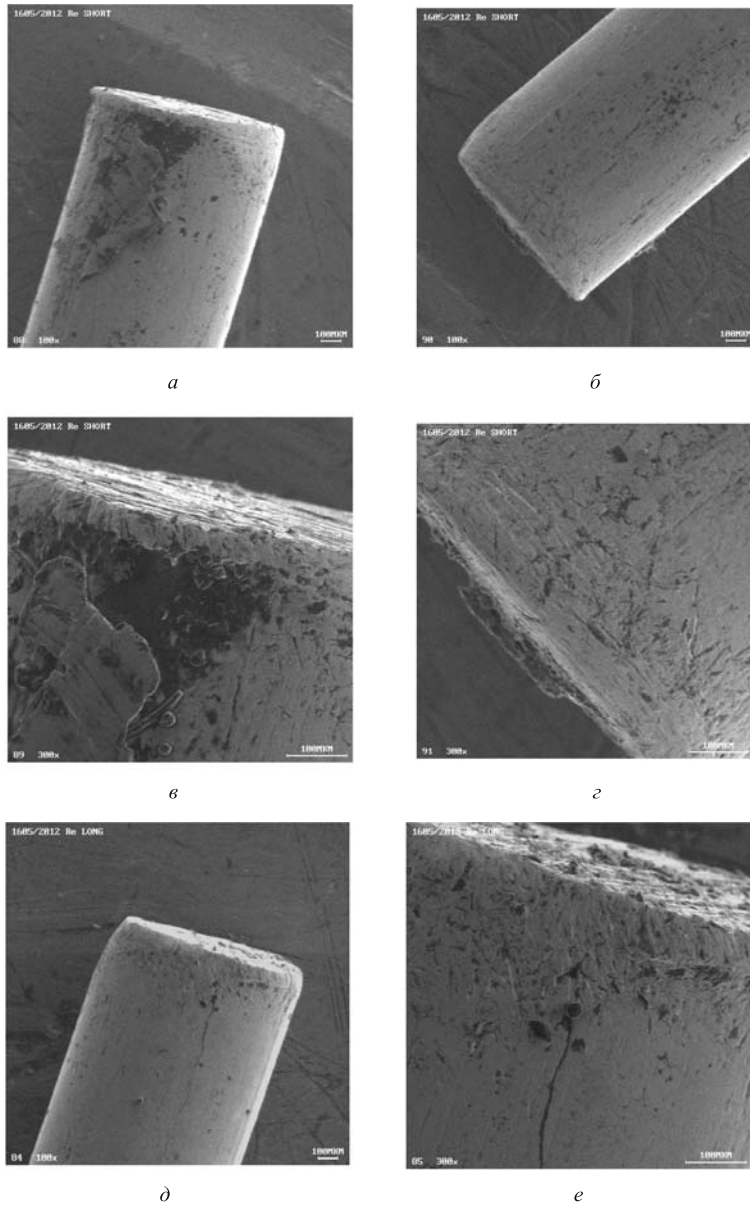


Рис. 14. Изображения концов двух проволок из рения при различных увеличениях: *a–c*) Re-проволока длиной 24,5 мм; *d, e*) Re-проволока длиной 33,0 мм

Обращает на себя внимание сильная деструкция обоих концов Re-провода (24,5 мм) с ярко выраженным выступом (см. рис. 14, *z*) и трещинами и бахромой (рис. 14, *e*). Детальные исследования этих Re-образцов будут выполнены позднее (см. выше).

2. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Полученные в данной работе результаты по изменению структуры поверхности, объемных свойств и химического состава образцов палладия и рения при облучении γ -квантами непрерывного спектра с граничной энергией 23 МэВ позволили установить, что они в целом подтверждают полученные ранние данные по синтезу новой структуры и наработке химических элементов более легких, чем палладий, в элементах СКВДД [1–5].

В отличие от предыдущей работы [1, 2, 4], в данных исследованиях материал всех элементов СКВДД был заменен на нержавеющую сталь (рис. 1), чтобы исключить наличие в СКВДД таких химических элементов, как медь и цинк. Энергия γ -квантов была увеличена до энергии 23 МэВ с тем, чтобы ввести в рассмотрение процессы, обусловленные гигантским дипольным резонансом [15].

Помимо трещин и значительных разрушений поверхности палладия и образования странной измененной формы на конце Pd-проводок в местах выхода и входа γ -квантов (см. рис. 2, 14) были обнаружены выбросы в виде застывших «солнечных протуберанцев», состоящие из химических элементов более легких, чем палладий, а именно: ${}^6\text{C}$, ${}^7\text{N}^\uparrow(?)$, ${}^8\text{O}$, ${}^9\text{F}$, ${}^{10}\text{Ne}^\uparrow(?)$, ${}^{11}\text{Na}$, ${}^{12}\text{Mg}$, ${}^{13}\text{Al}$, ${}^{14}\text{Si}$, ${}^{15}\text{P}$, ${}^{16}\text{S}$, ${}^{17}\text{Cl}$, ${}^{18}\text{Ar}^\uparrow(?)$, ${}^{19}\text{K}$, ${}^{20}\text{Ca}$, ${}^{22}\text{Ti}$, ${}^{24}\text{Cr}$, ${}^{25}\text{Mn}$, ${}^{26}\text{Fe}$, ${}^{28}\text{Ni}$. Обнаружение таких «протуберанцев» означает, что на внутренних стенках СКВДД из нержавеющей стали (см. рис. 1) также должны находиться застывшие капли расплава, состоящие из материалов этих «протуберанцев», а на задней стенке по направлению движения γ -квантов возможно образование синтезированных структур, как и в [1–5]. «Протуберанцы» позволяют подтвердить, с одной стороны, и объяснить, с другой стороны, образование синтезированной структуры на специальном сборнике в первых экспериментах, описанных в работах [1–5].

На поверхности палладия обнаружены частицы малого размера, состоящие из рения при его значительных концентрациях (рис. 3, 7–9 и табл. 2, 6, 7).

Как известно, температуры плавления и сублимации рения составляют 3453 и 5873 К соответственно [10]. Структура рения гексагональная плотноупакованная. Окисление рения происходит при 600 °С, а в атмосфере кислорода при нагревании выше 400 °С металл сгорает. Окисление рения с образованием оксидов (ReO_3 , Re_2O_7) наблюдается начиная с 300 °С и интенсивно протекает при температурах выше 600 °С в атмосфере кислорода. С водородом рений вплоть до температуры плавления не реагирует, а только

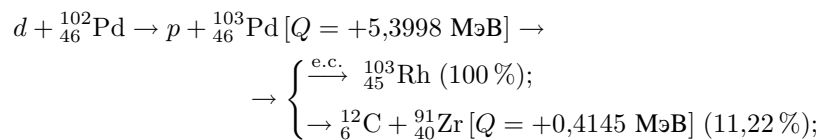
абсорбирует его. Рений может адсорбировать девять атомов водорода или дейтерия, образуя соединение $[\text{ReH}_9]^{2-}$ или $[\text{ReD}_9]^{2-}$ [8, 16]. Именно этот факт и послужил причиной, по которой авторы работы поместили наряду с палладием в камеру СКВДД и этот химический элемент, перспективный в том числе и с точки зрения получения дейтеридов рения.

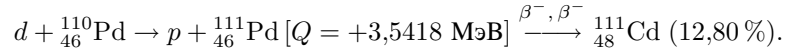
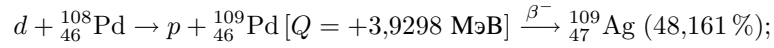
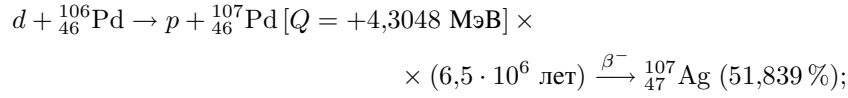
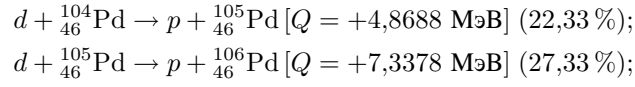
Рений, в отличие от других тугоплавких металлов, не образует карбидов. Остановимся отдельно на оксиде рения (VII) Re_2O_7 , его температурах плавления и кипения $t_{\text{пл}} = 301 \text{ }^\circ\text{C}$, $t_{\text{кип}} = 362,4 \text{ }^\circ\text{C}$ соответственно [10]. Оксид рения Re_2O_7 очень летуч при относительно низких температурах, поэтому он быстро испаряется с поверхности и не предохраняет, как и большинство редкоземельных металлов их от дальнейшего окисления [7, 8, 10]. Сублимируется при температуре от $220 \text{ }^\circ\text{C}$. Следовательно, обнаруженные на поверхности палладия кристаллиты, содержащие рений, по-видимому, представляют собой оксид рения, который вблизи трещин кристаллизовался (см. рис. 6–8) при охлаждении. Как видно, в Pd-образце наблюдается высокая концентрация углерода (табл. 1 — 76,22 ат.%; табл. 2 — 66,42 ат.%; табл. 3 — 47,58 ат.%; табл. 4 — 37,76 ат.%; табл. 5 — 37,25 и 42,80 ат.%) и кислорода (табл. 6 — 64,08 ат.%; табл. 7 — 72,12 ат.% и табл. 8 — 55,11 ат.%). А в Re-образцах наблюдается высокая концентрация углерода (табл. 9 — 65,65, 80,94 и 72,95 ат.% и табл. 10 — 72,22 ат.%). При этом высокая концентрация углерода, как правило, сопровождается и значительными концентрациями кислорода. И наоборот: высокая концентрация кислорода, как правило, сопровождается значительной концентрацией углерода. Основные реакции с образованием элементов легче палладия рассмотрены в работах [3, 5]. А реакции с образованием углерода и кислорода представлены в приложении.

Особо отметим, что и при применении γ -квантов с энергиями до 23 МэВ при облучении СКВДД с Re- и Pd-проводами были получены достаточно высокие температуры с выделением энергии от ядерных реакций деления с коэффициентом полезного действия, значительно превышающим единицу, что однозначно подтверждает возможность применения дейтерированных реакторов деления на пучках γ -квантов для получения энергии.

ПРИЛОЖЕНИЕ

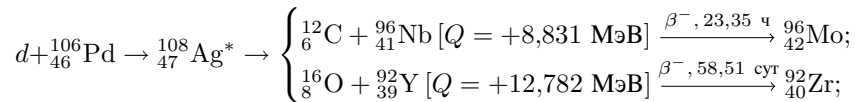
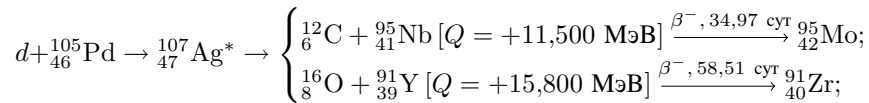
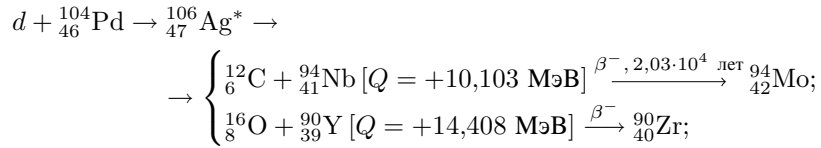
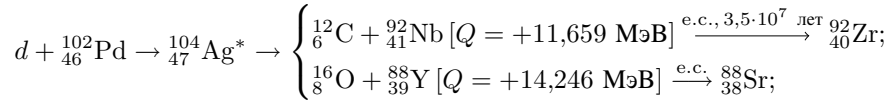
Рассмотрим реакции с дейтерием типа реакций Оппенгеймера [11], в Pd-проводе (см. также [12–14]).

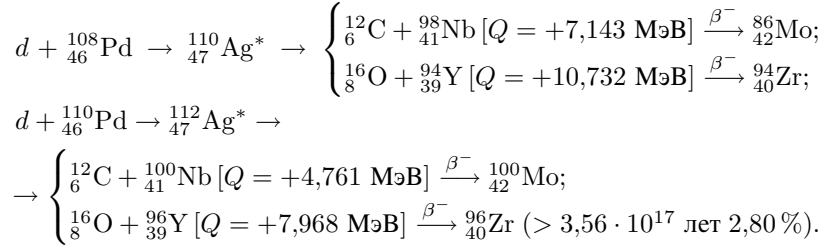




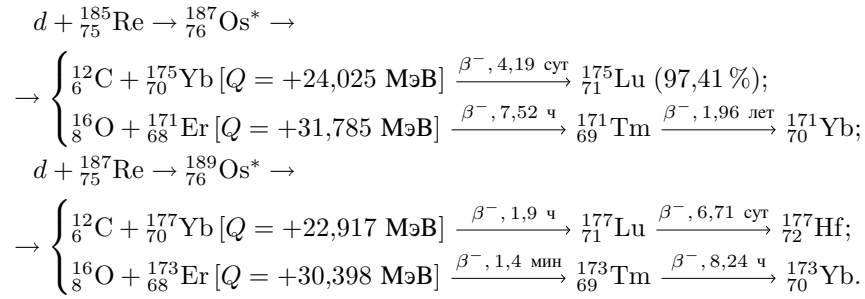
Как видно, только в реакции с ${}^{102}_{46}\text{Pd}$ может образовываться углерод, но концентрация этого изотопа только 1,02%. То есть в реакции Оппенгеймера [11] трудно получить обнаруженные в эксперименте концентрации кислорода и углерода, так как образующиеся при этом ядра стабильные.

Поэтому рассмотрим реакции подбарьерного слияния дейтерия с образованием составного ядра и распада из составного ядра в соответствии с подходом, развитым в работах [12–14].

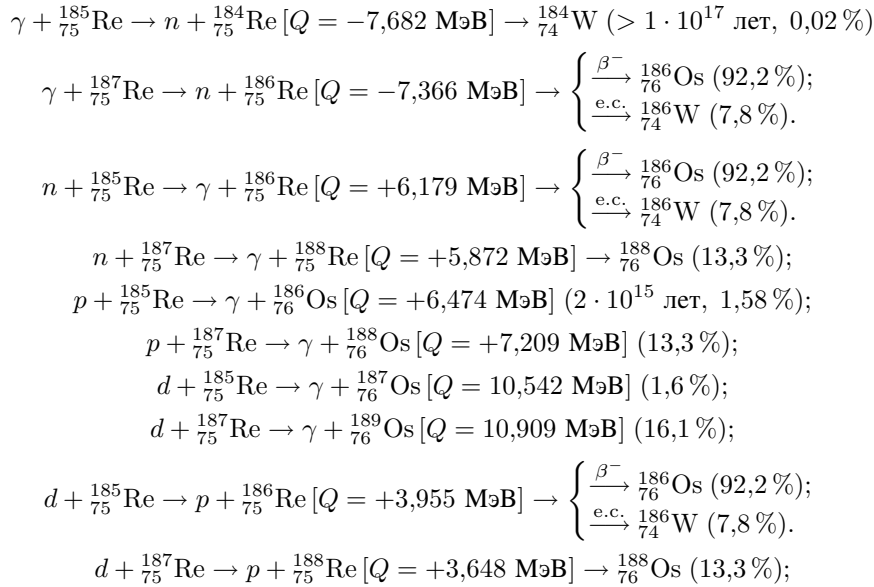




Рассмотрим реакции образования углерода и кислорода при делении возбужденного ядра рения после подбарьерного слияния с дейтерием:



Обратимся теперь к ядерным реакциям, в которых образуется из рения следующий по номеру элемент осмий (${}_{76}\text{Os}$):



Можно сделать вывод, что образование в больших количествах углерода и кислорода с окислением рения и других элементов, как продуктов ядерных реакций, должно сопровождаться образованием ряда относительно тяжелых элементов, но более легких, чем палладий и рений, таких как ^{38}Sr , ^{40}Zr , ^{42}Mo с радиоактивными элементами ^{39}Y , ^{41}Nb , а также ^{70}Yb , ^{71}Lu , ^{72}Hf в ^{75}Re -образце. Причем должны регистрироваться и цепочки распадов до стабильных или долгоживущих продуктов распадов. Это является основанием для столь подробного представления возможных реакции деления Pd и Re с цепочками распадов.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R.* // Eur. Phys. Lett. 2012. V. 99. P. 22001–22006.
2. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R.* // Part. Nucl. Lett. 2012 (in press).
3. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R.* // Part. Nucl. Lett. 2012 (in press).
4. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R.* JINR Preprint E15-2012-34. Dubna, 2012. 30 p.
5. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R.* JINR Preprint E15-2012-35. Dubna, 2012. 25 p.
6. *Дидык А. Ю., Вишневецкий Р., Вилчинска-Китовска Т.* Заявка на патент, регистрационный № 2012107796, входящий номер 011748 от 1 июня 2012 г.
7. Гидриды металлов / Под ред. В. Мюллера, Д. Блекледжа и Дж. Либовица. М.: Атомиздат, 1973. С. 429.
8. *Дидык А. Ю., Вишневецкий Р.* // ЭЧАЯ. 2013 (в печати).
9. *Zigmund P., Claussen C.* // J. Appl. Phys. 1981. V. 52, No. 2. P. 990.
10. WebElements. Periodic Tables of the Elements/Rhenium/Crystal Structures.
11. *Oppenheimer J. R., Fillips M.* // Phys. Rev. 1935. V. 48, No. 15. P. 500.
12. *Sierk A. J.* // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55, No. 6. P. 582–583.
13. *Sierk A. J.* // Phys. Rev. C. 1986. V. 33, No. 6. P. 2039–2053.
14. *Moretto L. G.* // Nucl. Phys. A. 1975. V. 247. P. 211.
15. *Ishkhanov B. A. et al.* Cross-Sections of Photon Absorption by Atomic Nuclei with the Numbers of Nucleons 12–65. Preprint SINP MSU 2002-27/711. М.: MSU, 2002. 22 p.
16. Transition Metal Hydrides / Ed. by E. L. Muetterties. N. Y.: Marcel Dekker, Inc., 1971; Гидриды переходных металлов / Ред. Е. Л. Мюттертиз. М.: Мир, 1975. 311 с.

Получено 4 июня 2012 г.

Редактор *М. И. Зарубина*

Подписано в печать 19.09.2012.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 1,5. Уч.-изд. л. 1,74. Тираж 225 экз. Заказ № 57763.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/