

P15-2013-20

А. Ю. Дидык *, Р. Вишневецкий ^{1, **}, Т. Вилчинска-Китовска ¹

**ИЗМЕНЕНИЯ СВОЙСТВ ПОВЕРХНОСТИ
И ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА КОМПОНЕНТОВ
КАМЕРЫ ВЫСОКОГО ДАВЛЕНИЯ
С Pd-СТЕРЖНЕМ ВНУТРИ,
ОБЛУЧЕННЫХ 10-МэВ γ -КВАНТАМИ
В ПЛОТНОМ ДЕЙТЕРИИ**

Направлено в журнал «Письма в ЭЧАЯ»

¹ Национальный центр ядерных исследований, Отвоцк, Польша

* E-mail: didyk@jinr.ru

** E-mail: roland.wiśniewski@gmail.com

Дидык А. Ю., Вишневский Р., Вилчинска-Китовска Т.

P15-2013-20

Изменения свойств поверхности и элементного состава компонентов камеры высокого давления с Pd-стержнем внутри, облученных 10-МэВ γ -квантами в плотном дейтерии

Данная работа является продолжением и дополнением к работе [1], в которой представлены результаты по изучению поверхности и элементного состава Pd-стержня и сборника продуктов ядерных и химических реакций в камере высокого давления дейтерия (DHPC) при облучении тормозными γ -квантами с энергией 10 МэВ в течение 18 ч на электронном ускорителе МТ-25 при токе пучка электронов 11–13 мкА. DHPC была заполнена молекулярным дейтерием при давлении примерно 1,2 кбар, внутри нее находился насыщенный дейтерием палладиевый стержень. После облучения элементный состав поверхностей всех остальных элементов DHPC, находящихся в плотном дейтерии, был изучен с использованием сканирующей электронной микроскопии и рентгеновского микроэлементного зондового анализа.

Установлено, что все внутренние поверхности DHPC оказались покрыты микрочастицами свинца. Помимо этого обнаружены наряду с легкими ${}^6\text{C}$, ${}^8\text{O}$, ${}^{11}\text{Na}$, ${}^{12}\text{Mg}$, ${}^{13}\text{Al}$, ${}^{14}\text{Si}$, ${}^{22}\text{Ti}$, ${}^{25}\text{Mn}$, ${}^{26}\text{Fe}$, ${}^{29}\text{Cu}$, ${}^{30}\text{Zn}$ такие тяжелые металлы, как ${}^{47}\text{Ag}$, ${}^{73}\text{Ta}$, ${}^{74}\text{W}$, ${}^{78}\text{Pt}$, ${}^{79}\text{Au}$ и ${}^{82}\text{Pb}$. Обсуждаются процессы, способные привести к наблюдаемым аномалиям во вновь образовавшихся химических элементах.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2013

Didyk A. Yu., Wiśniewski R., Wilczynska-Kitowska T.

P15-2013-20

Changes of Surface Structure and Elemental Composition of Components of DHPC Inner Surfaces, Irradiated with 10-MeV γ Quanta in Dense Deuterium Gas

This work is a continuation and addition to [1], which presented results on the studies of surface and elemental compositions of Pd rod and brass screw for collection of nuclear and chemical reaction products in a deuterium high-pressure chamber (DHPC) under irradiation with γ quanta with an energy of 10 MeV during 18 h at the electron accelerator MT-25 at the beam current 11–13 μA . The DHPC was filled with 1.2 kbar molecular deuterium, in which a Pd rod saturated with deuterium was loaded. After irradiation the elemental compositions of other surfaces of all DHPC elements, which were inside the DHPC in dense deuterium, were studied using electron scanning microscope and X-ray microprobe analysis.

It was established that all surfaces including the surface of a high-purity palladium rod (99.995%) were covered with partly homogeneous layer or large microparticles of lead. Also, such light elements as ${}^6\text{C}$, ${}^8\text{O}$, ${}^{11}\text{Na}$, ${}^{12}\text{Mg}$, ${}^{13}\text{Al}$, ${}^{14}\text{Si}$, ${}^{22}\text{Ti}$, ${}^{25}\text{Mn}$, ${}^{26}\text{Fe}$, ${}^{29}\text{Cu}$, ${}^{30}\text{Zn}$ and heavy metals as ${}^{47}\text{Ag}$, ${}^{73}\text{Ta}$, ${}^{74}\text{W}$, ${}^{78}\text{Pt}$, ${}^{79}\text{Au}$ and ${}^{82}\text{Pb}$ were observed. The possible processes which can cause the observed anomalies in the composition of newly created chemical elements are discussed shortly.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2013

ВВЕДЕНИЕ

В серии предыдущих статей были представлены результаты двух исследований: по изменению структуры поверхностей и элементных составов всех компонентов, поверхности которых находились с внутренней стороны дейтерированной камеры высокого давления (ДНРС), т. е. имели прямой контакт с дейтерием при давлении около 3,0 кбар при облучении ДНРС γ -квантами с энергиями ~ 10 МэВ [1] и 9 МэВ [2–4].

Также были выполнены исследования с модифицированными камерами ДНРС удлиненного типа (см. [5, 6]), в одну из которых были помещены стержни из Pd (один) и Re (три) [6], а в другую — ванадиевый и из нержавеющей стали [5] при давлении дейтерия внутри камеры около 2 кбар, под действием γ -квантов с энергией 23 МэВ, т. е. диапазоне энергий γ -квантов, характерных для гигантского дипольного резонанса [7].

На основе обнаруженных изменений концентраций химических элементов была представлена феноменологическая модель ядерных реакций с учетом реакции Оппенгеймера [8] и ей сопутствующих реакций в капельной модели ядра при изменении вращательного момента [9–11].

В работе [1] приведены результаты по изменению структуры поверхности и химического состава Pd-стержня и латунного сборника продуктов ядерных реакций в ДНРС, заполненной дейтерием при давлении $\cong 1,2$ кбар, при облучении γ -квантами с энергией 10 МэВ при токе электронного пучка 11–13 мкА в течение 18 ч.

Целью настоящей работы являлось продолжение описания результатов эксперимента по изучению структуры поверхности и элементного состава компонентов ДНРС, которые не вошли в результаты, представленные в работе [1], но, по мнению авторов, их необходимо опубликовать для подтверждения полученных в [1] результатов.

1. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Схема ДНРС приведена на рис. 1 (см. также [2–4]).

Методика эксперимента вместе с описанием камеры ДНРС приведена в работах [1, 2]. Давление молекулярного дейтерия в ДНРС при облучении γ -квантами составляло $P_{D_2} \cong 1,2$ кбар, что соответствует расчетному значению концентрации молекулярного газообразного дейтерия $N_{D_2} \cong 1,476 \times 10^{22}$ мол. D_2/cm^3 при его плотности $\rho_{D_2} \cong 0,088$ г/см³ [1–4]). Камера ДНРС была облучена тормозными γ -квантами с энергией 10 МэВ, полученными после прохождения пучка электронов через W -тормозную фольгу толщиной 3 мм и алюминиевый поглотитель толщиной 25 мм. Длительность облучения γ -квантами ДНРС составила 18 ч при токе электронного пучка 11–13 мкА с диаметром пучка на вводе в W -тормозную фольгу 6–8 мм.

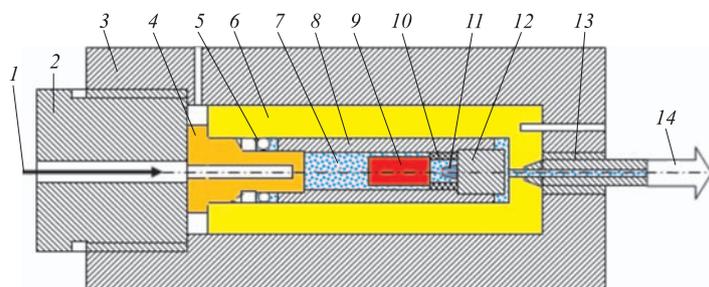


Рис. 1. Схематическое изображение ДНРС: 1 — поток ионизирующих частиц (γ -квантов); 2 — уплотнение с входным отверстием; 3 — уплотнение для высокого давления в камере; 4 — входное окно из $\text{Cu}_{0,98}\text{Be}_{0,02}$; 5 — уплотнение для высокого давления; 6 — стенки камеры высокого давления из $\text{Cu}_{0,98}\text{Be}_{0,02}$; 7 — дейтерий; 8 — латунная втулка; 9 — Pd-стержень; 10 — разделительная фольга из марганца; 11 — синтезированный продукт реакции; 12 — латунный сборник; 13 — капилляр высокого давления; 14 — клапан и тензор-датчик давления

Расчетная плотность потока γ -квантов на 1 мкА тока электронного пучка составляла $Y_\gamma \approx 7,5 \cdot 10^{12} \text{ МэВ}^{-1} \cdot \text{ср}^{-1}/1 \text{ мкА}$. При этом потоке γ -квантов на 1 мкА выход нейтронов и протонов из реакции фоторащепления дейтронов $d(\gamma, n)p$ под действием γ -квантов составлял $Y_{n,p} \approx 0,8 \cdot 10^6 \text{ n, p}/1 \text{ мкА}$ (см. расчеты в [1]).

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ СТРУКТУРЫ ПОВЕРХНОСТЕЙ И РЕНТГЕНОВСКОГО МИКРОЭЛЕМЕНТНОГО ЗОНДОВОГО АНАЛИЗА ХИМИЧЕСКОГО СОСТАВА ВСЕХ ЭЛЕМЕНТОВ ВНУТРИ ДНРС

В [1] представлено описание методики исследований и приведены расчеты концентраций дейтерия в ДНРС при давлении 1,2 кбар.

В связи с необычностью изменений химического состава в этой работе даны детальные исследования самих поверхностей и их элементного состава ряда компонентов внутри ДНРС, а именно представлены результаты исследований структуры и химического состава таких компонентов, как входное окно из бериллиевой бронзы с резьбовым соединением входного окна 4 и латунной втулки 8, разделительная марганцевая фольга 10, обе внутренние поверхности разрезанной пополам латунной втулки 8, а также результаты по изучению резьбы на латунной втулке — сборнике продуктов ядерных реакций 12.

2.1. Исследование входной диафрагмы из бериллиевой бронзы.

На рис. 2, а представлено СЭМ-изображение внутренней поверхности входной диафрагмы (см. рис. 1, поз. 4), на которой видны заметные изменения

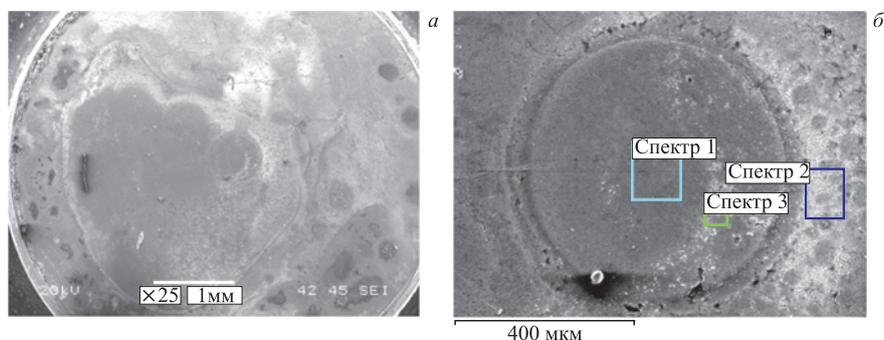


Рис. 2. СЭМ-изображения поверхности входной диафрагмы (а) и центральной части входного окна с сильно деструктурированным краем и тремя областями (б), в которых был проведен РМЗА

даже при относительно малом увеличении: $\times 25$, а на рис. 2, б — центральной части входного окна с сильно деструктурированным краем диаметром примерно 660 мкм и тремя отмеченными областями, в которых был сделан рентгеновский микроэлементный зондовый анализ (РМЗА).

В табл. 1 приведено распределение химических элементов в области входной диафрагмы, состоящей из бериллиевой бронзы, т. е. $\text{Cu}_{0,98}\text{Be}_{0,02}$, и областях, отмеченных на рис. 2, б.

Таблица 1. Распределение химических элементов в областях входной диафрагмы, отмеченных на рис. 2, б (в вес. %)

Спектр	${}^6\text{C}$	${}^8\text{O}$	${}^{17}\text{Cl}$	${}^{20}\text{Ca}$	${}^{26}\text{Fe}$	${}^{29}\text{Cu}$	${}^{30}\text{Zn}$	${}^{82}\text{Pb}$
1	10,55	5,69	—	—	—	83,76	—	—
2	28,74	21,88	0,23	0,36	1,17	37,5	7,86	2,26
3	20,36	12,60	0,30	—	—	65,5	—	1,23

Как видно из таблицы, на поверхности диафрагмы произошли значительные изменения в элементном составе. В центральной части диафрагмы концентрация меди наибольшая, помимо углерода и кислорода других химических элементов нет. На участках диафрагмы со светлыми вкраплениями появились цинк (7,86 вес. %) и свинец (2,26 вес. %).

Можно предположить, что все химические элементы, кроме меди и не регистрируемого при измерениях бериллия, привнесены из образца палладия. Нечто похожее имело место и в первом эксперименте, описанном в [2–4], где наблюдалось значительное разрушение материала поверхности входной диафрагмы, обращенной внутрь ДНРС, но с другим элементным составом.

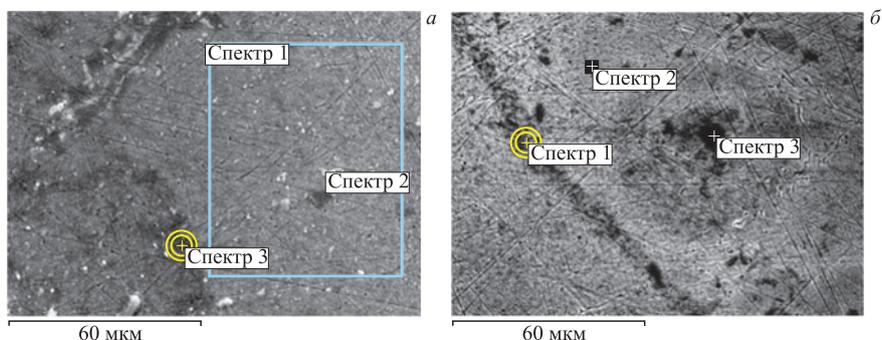


Рис. 3. СЭМ-изображения двух участков входной диафрагмы с областью (а) и точками (б), в которых был проведен РМЗА

На рис. 3 представлены СЭМ-изображения двух других участков поверхности входной диафрагмы, также с отмеченными областями и точками, в которых был выполнен РМЗА.

Отметим, что спектр 1 (рис. 3, а) измерялся с участка размером $57,7 \times 71,5$ мкм; спектры 2 и 3 (рис. 3, а) получены в отмеченных точках; область, с которой измерялся спектр 3, отмечена кругом диаметром примерно 8,4 мкм. В табл. 2 представлены распределения химических элементов в отмеченных на рис. 3, а участках.

Таблица 2. Распределение химических элементов в участках входной диафрагмы, отмеченных на рис. 3, а (в вес. %)

Спектр	$_{6}\text{C}$	$_{8}\text{O}$	$_{13}\text{Al}$	$_{20}\text{Ca}$	$_{26}\text{Fe}$	$_{29}\text{Cu}$	$_{30}\text{Zn}$	$_{82}\text{Pb}$
1	16,25	9,31	—	—	0,57	72,87	—	1,01
2	15,70	17,79	2,87	0,64	1,70	40,61	19,17	1,52
3	19,98	10,06	—	—	0,71	67,89	—	1,37

Как видно из табл. 2, на более светлом участке (спектр 2) отмечается высокая концентрация цинка (19,17 вес. %) и относительно невысокая концентрация свинца (1,52 вес. %), но более низкая концентрация меди (40,61 вес. %), чем на темных участках: 72,87 и 67,89 вес. % соответственно.

На основании проведенных исследований можно сделать вывод, что обратная сторона входной диафрагмы значительно видоизменилась: на поверхности появились трещины, и обнаружены новые элементы, такие как углерод, кислород, хлор, кальций, железо, цинк и тяжелый химический элемент — свинец.

2.2. Измерение концентрации химических элементов на поверхности разделительной фольги из манганина. Как и в работах [1, 3, 4], латунный сборник отделяется от поверхности Pd-стержня разделительной фольгой из манганина (см. рис. 1, поз. 12, 9 и 10 соответственно). Поэтому представляется важным проанализировать внутреннюю и внешнюю, прилегающую к поверхности латунной втулки (рис. 1, поз. 8), поверхности этой фольги методами СЭМ и РМЗА.

На рис. 4 представлен участок поверхности манганиновой фольги с выделением двух точек (спектры 1 и 2) и области (спектр 3) (а), а также соответствующие три спектра характеристического рентгеновского излучения (ХСРИ) (б-г).

В табл. 3 показано распределение химических элементов в выделенных точках и области. Измеренные при РМЗА соотношения этих элементов в манганине следующие:

- спектр 1: Cu — 78,3%; Mn — 17,7%; Ni — 4,0%;
- спектр 2: Cu — 77,7%; Mn — 18,0%; Ni — 4,3%;
- спектр 3: Cu — 78,3%; Mn — 17,7%; Ni — 4,0%.

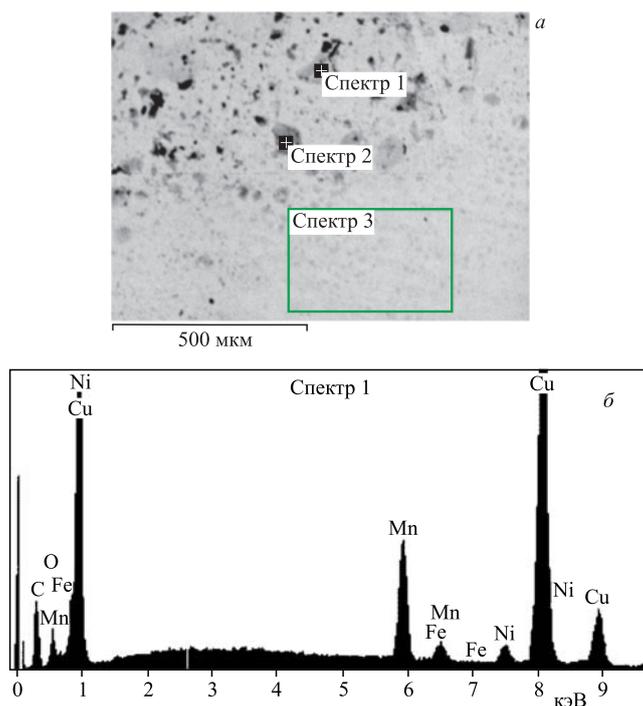


Рис. 4. СЭМ-изображение участка поверхности манганиновой фольги с указанием области и двух точек (а), в которых был проведен РМЗА, и соответствующие три ХСРИ (б-г)

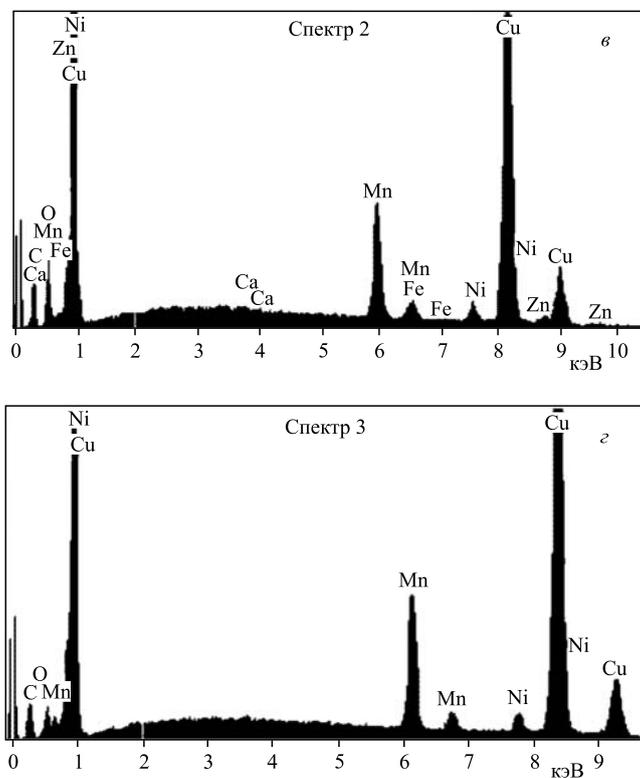


Рис. 4. Окончание

Таблица 3. Распределение химических элементов в отмеченных на рис. 4 точках и области (в вес. %)

Спектр	^{12}C	^{16}O	^{40}Ca	^{55}Mn	^{56}Fe	^{58}Ni	^{63}Cu	^{65}Zn
1	16,98	7,27	—	13,32	0,55	3,02	58,86	—
2	12,63	11,92	0,2	12,46	0,79	2,98	53,8	5,22
3	10,51	4,49	—	15,02	—	3,43	66,56	—

Из приведенных оценок и РМЗА можно сделать вывод, что метод РМЗА достаточно хорошо позволяет проводить измерения концентраций элементов в известных сплавах типа манганина. Этот результат также совпадает с более ранними измерениями манганиновой фольги в работах [1, 3, 4].

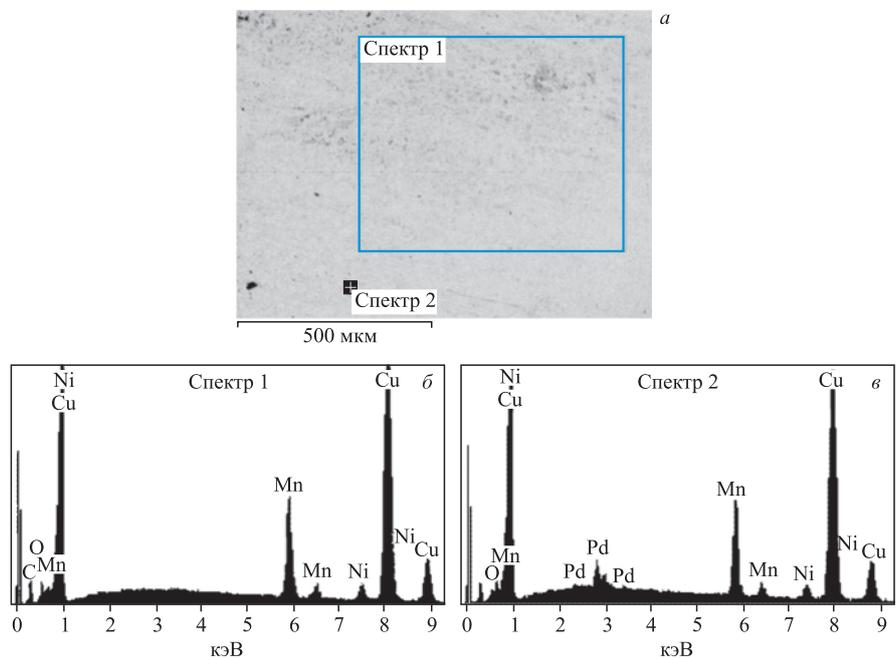


Рис. 5. СЭМ-изображение участка поверхности марганцевой фольги с указанием области (спектр 1) и точки (спектр 2) (а) с соответствующими им двумя ХСРИ (б, в)

На рис. 5 представлена поверхность марганцевой фольги с указанием области (спектр 1) и точки (спектр 2) (а), в которых был проведен РМЗА, с соответствующими им двумя ХСРИ (б, в).

В табл. 4 приведено распределение химических элементов в вышеуказанных точке и области.

Таблица 4. Распределение химических элементов в отмеченных на рис. 5, а области (спектр 1) и точке (спектр 2) (в вес. %)

Спектр	${}^6\text{C}$	${}^8\text{O}$	${}^{24}\text{Mn}$	${}^{28}\text{Ni}$	${}^{29}\text{Cu}$	${}^{46}\text{Pd}$
1	9,90	3,58	14,52	3,47	68,52	—
2	—	1,22	14,56	3,13	76,21	4,87

Снова вычислим и представим соотношение между основными элементами в марганце:

спектр 1: Cu — 79,2%; Mn — 16,8%; Ni — 4,0%;

спектр 2: Cu — 81,2%; Mn — 15,5%; Ni — 3,3%.

Из табл. 4 можно сделать вывод, что на внутренней поверхности манганина присутствуют частицы палладия, которые были выброшены с поверхности Pd-стержня и попали на манганиновую фольгу, так же как и цинк (см. табл. 3).

На рис. 6, *a* представлен участок поверхности манганиновой фольги с частицей более светлого оттенка, чем поверхность манганина, с выделенной на ней точкой (спектр 1), в которой был проведен РМЗА, а на рис. 6, *б* — соответствующий ХСРИ.

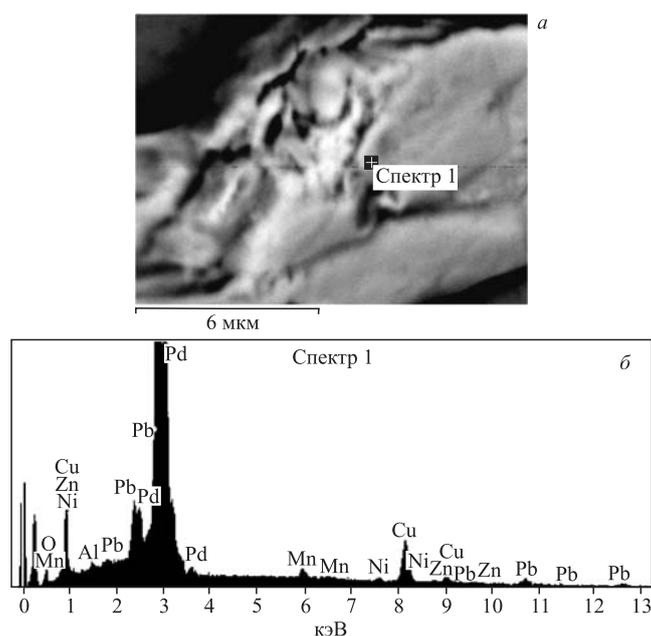


Рис. 6. СЭМ-изображение участка поверхности манганиновой фольги со светлой частицей и отдельно взятой на ней точкой (спектр 1) (*a*), в которой проведен РМЗА, и соответствующий ХСРИ (*б*)

Таблица 5. Распределение химических элементов в отмеченной на рис. 6, *a* точке (в вес. %)

Спектр	^8O	^{13}Al	^{24}Mn	^{28}Ni	^{29}Cu	^{46}Pd	^{82}Pb
1	5,45	0,24	0,93	0,40	11,46	75,2	6,35

В табл. 5 представлено распределение химических элементов в отдельной точке, отмеченной на рис. 6, *a*.

Для проверки сделанного выше утверждения снова представим соотношение между основными элементами манганина:

спектр 1: Cu — 89,6%; Mn — 7,3%; Ni — 3,1%.

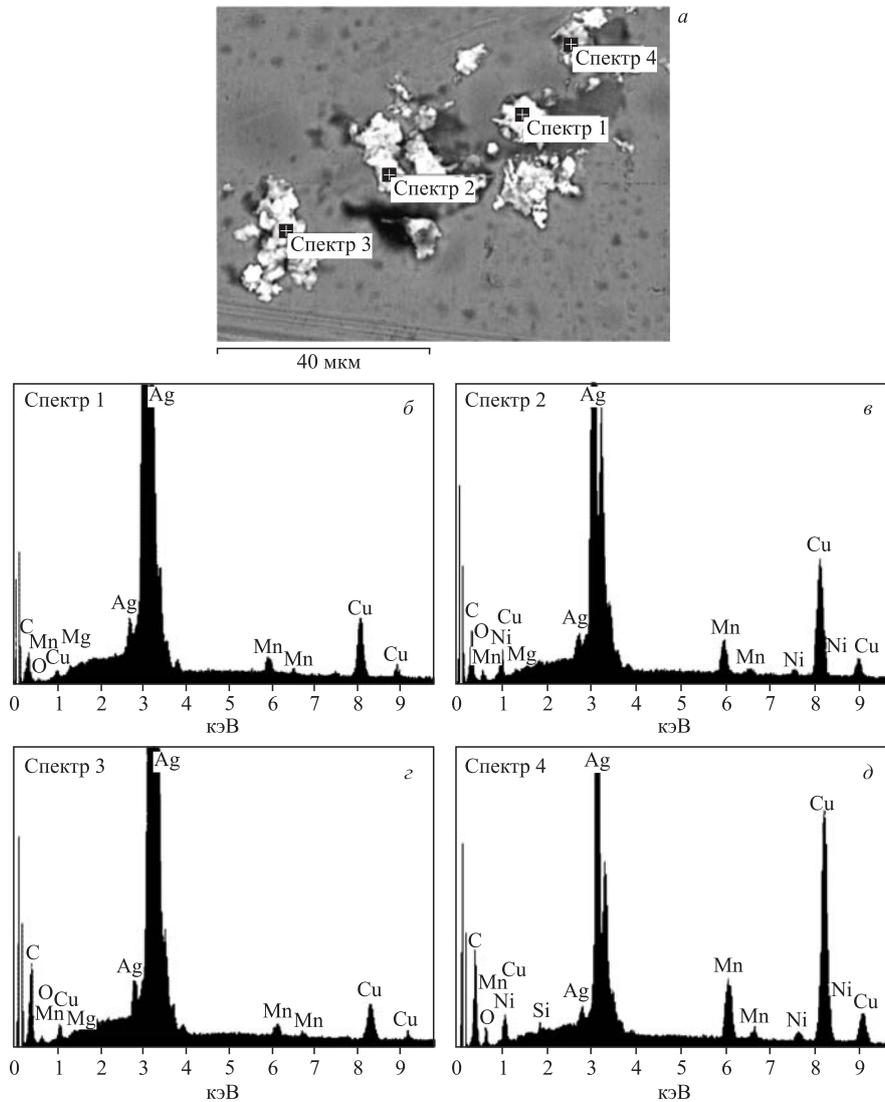


Рис. 7. СЭМ-изображение участка поверхности фольги марганца со светлыми частичками (а), в четырех точках которых был проведен РМЗА, и ХСРП (б–д)

Методом РМЗА установлено, что в частице (рис. 6, а) с гладкой поверхностью, напоминающей расплавленную, а затем застывшую, обнаружен сплав палладия (75,2 вес. %) и свинца (6,35 вес. %). Эта частица могла попасть на фольгу из марганца только путем ее выброса с поверхности Рд-стержня,

скорее всего, из областей, напоминающих кратеры или выступы (см. [1], рис. 11–14 и данные в табл. 13–19).

На рис. 7, *a* представлен участок поверхности фольги из манганина с несколькими светлыми частичками (с большим зарядом ядер входящих в них элементов), в четырех точках которых (спектры 1–4) и проведен РМЗА.

В табл. 6 показано распределение химических элементов в этих точках.

Таблица 6. Распределение химических элементов в отмеченных на рис. 7, *a* точках (в вес. %)

Спектр	${}^6\text{C}$	${}^8\text{O}$	${}^{12}\text{Mg}$	${}^{14}\text{Si}$	${}^{24}\text{Mn}$	${}^{28}\text{Ni}$	${}^{29}\text{Cu}$	${}^{47}\text{Ag}$
1	1,46	1,32	0,33	—	1,86	—	1,55	93,48
2	6,88	5,38	0,35	—	4,73	1,14	8,27	73,24
3	5,76	3,22	0,31	—	1,21	—	3,42	86,07
4	14,60	9,21	—	0,28	10,62	2,45	7,17	55,68

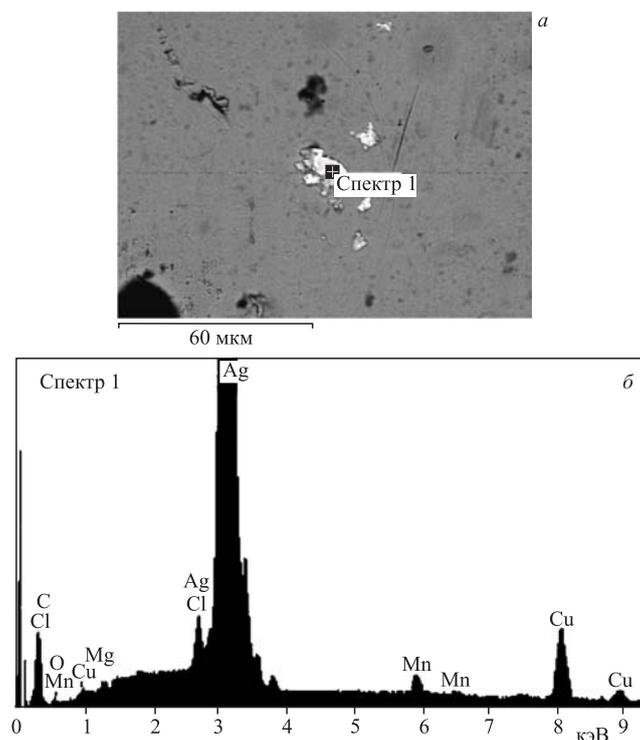


Рис. 8. СЭМ-изображение участка поверхности фольги из манганина с несколькими светлыми частичками и отдельно взятой точкой (*a*), в которой был проведен РМЗА, и ХСРИ (*б*)

Для проверки сделанного выше утверждения снова получим соотношение между основными элементами манганина:

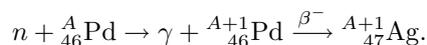
спектр 2: Cu — 89,6 %; Mn — 7,3 %; Ni — 3,1 %;
 спектр 4: Cu — 89,6 %; Mn — 7,3 %; Ni — 3,1 %.

На рис. 8 представлен другой участок поверхности фольги из манганина с несколькими светлыми частичками и отдельно взятой точкой, в которой проведен РМЗА (спектр 1) (а), а также соответствующий ХСРИ (б). В табл. 7 приведено распределение химических элементов в отмеченной на рис. 8, а точке.

Таблица 7. Содержание химических элементов в точке, отмеченной на рис. 8, а (в вес. %)

Спектр	${}_6\text{C}$	${}_8\text{O}$	${}_{12}\text{Mg}$	${}_{17}\text{Cl}$	${}_{24}\text{Mn}$	${}_{29}\text{Cu}$	${}_{47}\text{Ag}$
1	4,31	2,51	0,51	0,15	1,75	1,18	89,59

Как видно из табл. 6 и 7, эти светлые частицы состоят преимущественно из серебра (до 98,43 вес. %). Серебро может образовываться по реакции типа



2.3. Исследование структуры поверхности и элементного состава латунной втулки, разрезанной на две половины. Латунная втулка (см. рис. 1, поз. 8), в которую помещен Pd-стержень, была разрезана вдоль продольной оси (см. рис. 9).

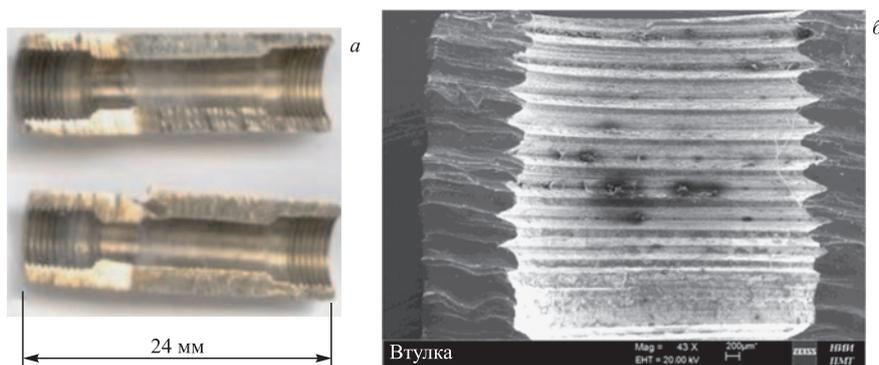


Рис. 9. Две половинки разрезанной втулки с покрывшейся беловатым налетом внутренней частью (а) и резьба на одной из половинок (б)

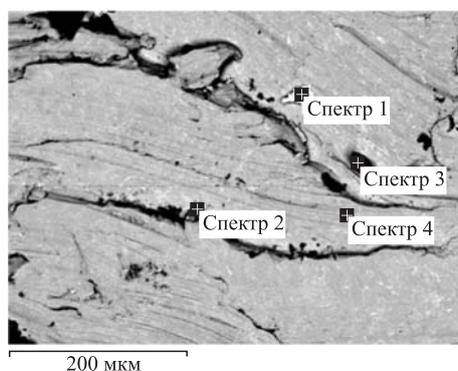


Рис. 10. Участок поверхности внутренней части втулки в месте ее распила с выделенными точками, в которых был сделан РМЗА

На рис. 9, *a* наглядно видно даже при небольшом увеличении, особенно в том месте, где со стенкой латунной втулки контактировал Pd-стержень, что ее поверхность покрылась беловатым налетом.

На рис. 10 представлен участок поверхности внутренней части втулки в месте ее распила с выделенными точками, в которых был сделан РМЗА. Результаты анализа представлены в табл. 8.

Таблица 8. Распределение химических элементов в выделенных четырех точках участка поверхности на рис. 10 (в вес. %)

Спектр	⁶ C	⁸ O	²⁹ Cu	³⁰ Zn	⁴⁷ Ag	Cu/Zn
1	2,24	—	1,03	0,35	96,38	2,94
2	2,22	1,33	4,54	1,39	90,53	3,26
3	Спектр снят из углубления, поэтому данные не приведены					
4	16,04	1,13	51,07	31,76	—	1,61

Из таблицы видно, что на более светлых участках внутри распиленной втулки из бронзы состава примерно 62 % Cu и 38 % Zn (см. данные по спектру 4) образуется в значительных количествах серебро — до 96,38 вес. %.

На рис. 11 представлен участок поверхности внутренней части распиленной втулки с белыми вкраплениями, в одном из которых сделан РМЗА. В табл. 9 дано распределение химических элементов на этом участке (в вес. %). По результатам РМЗА, на этой части втулки во всех мелких светлых скоплениях присутствует свинец — до 7,85 вес. %.

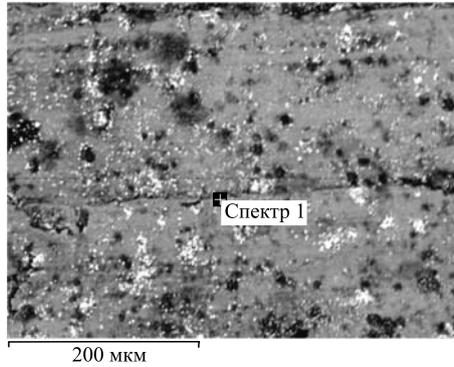


Рис. 11. Участок поверхности внутренней части распиленной втулки с белыми вкраплениями, в одном из которых сделан РМЗА

Таблица 9. Распределение химических элементов в выделенном светлом вкраплении на поверхности на рис. 11 (в вес. %)

${}^6\text{C}$	${}^8\text{O}$	${}^{29}\text{Cu}$	${}^{30}\text{Zn}$	${}^{82}\text{Pb}$	Cu/Zn
21,06	22,75	24,22	24,13	7,85	1,0

На рис. 12 представлен другой участок поверхности внутренней части распиленной втулки, также с вкраплениями, покрывающими почти всю поверхность исходной латуни, в трех из которых сделан РМЗА.

В табл. 10 приведено распределение химических элементов в спектрах 1, 2, 3 на рис. 12. Здесь спектр 1 соответствует светлому участку поверхности, спектр 2 — серому и спектр 3 — темному.

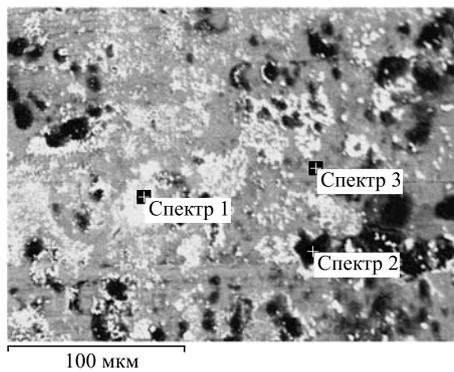


Рис. 12. Участок поверхности внутренней части распиленной втулки с вкраплениями, в трех из которых сделан РМЗА

Таблица 10. Распределение химических элементов в выделенных (светлом, сером и темном) вкраплениях поверхности на рис. 12 (в вес. %)

Спектр	${}^6\text{C}$	${}^8\text{O}$	${}^{17}\text{Cl}$	${}^{29}\text{Cu}$	${}^{30}\text{Zn}$	${}^{82}\text{Pb}$	Cu/Zn
1	18,99	22,78	0,25	12,62	13,18	32,19	0,96
2	13,66	36,52	—	3,07	39,52	7,23	0,0778
3	11,49	5,95	—	45,09	35,95	1,53	1,25

На наиболее светлом участке латунной втулки присутствует до 32,19 вес. % свинца, при соотношении $\text{Cu/Zn} \approx 1$, в сером свинца меньше — только 7,23 вес. %, а весовые концентрации цинка и кислорода очень высоки: 39,52 и 36,52 вес. % соответственно. И только на темном участке концентрация свинца уменьшается значительно, а соотношение $\text{Cu/Zn} \approx 1,25$, что уже близко к ранее промеренному значению исходной латуни: $\text{Cu/Zn} \approx 1,61$ (см. табл. 8).

На рис. 13 и 14 представлены участки поверхности распиленной втулки в местах, где расположена резьба (см. рис. 9, а). На рис. 13 видны светлые вкрапления и участок серого цвета. В выбранных двух точках проведен РМЗА.

В табл. 11 отображены результаты этого анализа.

Видно, что в светлой точке (спектр 2) обнаружены серебро (39,27 вес. %) и свинец (4,90 вес. %), а в серой (спектр 1) — относительно немного свинца (3,27 вес. %), но в обеих точках за счет регистрации рентгеновского излуче-

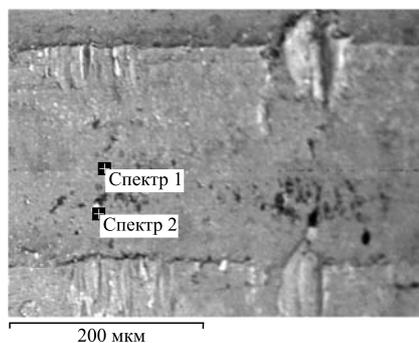


Рис. 13. Участок поверхности внутренней части распиленной втулки со светлыми вкраплениями в месте, где резьба, в двух точках проведен РМЗА

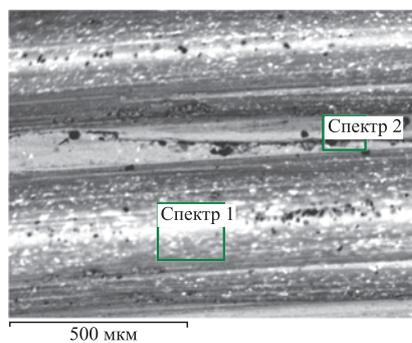


Рис. 14. Участок поверхности внутренней части распиленной втулки со светлыми вкраплениями в месте, где резьба, в спектрах 1 и 2 проведен РМЗА

Таблица 11. Распределения химических элементов в двух точках на рис.13 (в вес. %)

Спектр	${}^6\text{C}$	${}^8\text{O}$	${}_{29}\text{Cu}$	${}_{30}\text{Zn}$	${}_{47}\text{Ag}$	${}_{82}\text{Pb}$	Cu/Zn
1	10,05	12,93	46,82	26,94	—	3,27	1,74
2	8,58	12,50	21,34	13,40	39,27	4,90	1,59

Таблица 12. Распределение химических элементов на двух участках на рис.14 (в вес. %)

Спектр	${}^6\text{C}$	${}^8\text{O}$	${}_{13}\text{Al}$	${}_{29}\text{Cu}$	${}_{30}\text{Zn}$	${}_{82}\text{Pb}$	Cu/Zn
1	18,35	6,91	0,43	42,08	28,84	3,38	1,46
2	21,42	13,96	0,83	32,15	18,93	12,70	1,70

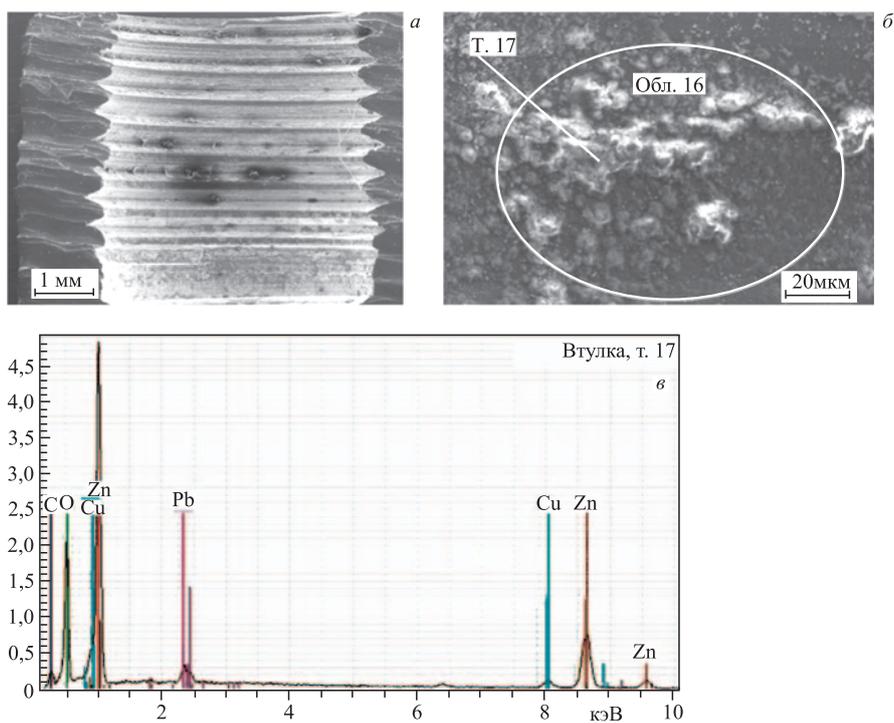


Рис. 15. Участок поверхности внутренней части разрезанной втулки (а) с выделенной областью (б), в которой измерен ХСРИ (в)

ния латунь имеет практически свой обычный состав: 1,74 (спектр 1) и 1,59 (спектр 2).

На рис. 14 представлены зубцы винтовой нарезки (см. рис. 9, б). На участках размерами $187,5 \times 162,5$ мкм на вершине зубца (спектр 2) и 125×100 мкм внутри нарезки (спектр 1) проведен РМЗА. Как видно, вершина зубца более плотно покрыта участками белого цвета и совсем редко встречаются внизу нарезки зубца. В табл. 12 приведено распределение химических элементов в спектрах 1 и 2.

Вывод о том, что выступы резьбы покрыты вкраплениями в виде частичек свинца подтверждается и РМЗА на обозначенных выше участках.

Для сравнения приведем результаты, полученные на другом электронном микроскопе со своим анализатором.

На рис. 15 представлены СЭМ-изображения разрезанной втулки с отчетливо наблюдаемыми зубцами винтовой нарезки (а) и участка центральной части разрезанной втулки (б) с выделенной областью, в которой получен ХСРИ (в), сделанный в т. 17.

На рис. 16, а приведено СЭМ-изображение участка центральной части разрезанной втулки с выделенной точкой, в которой проведен РМЗА, а на рис. 16, б — соответствующий ХСРИ.

В табл. 13 даны результаты РМЗА в т. 18.

На рис. 17, а–г представлены СЭМ-изображения различных участков разрезанной втулки с выделенной точкой, в которой проведен РМЗА, а на рис. 17, д — соответствующий ХСРИ. Табл. 14 показывает распределение химических элементов в т. 19.

На рис. 18 даны СЭМ-изображения различных участков разрезанной втулки (а, б) с выделенной областью, в которой проведен РМЗА, и соответствующий ХСРИ (в). В табл. 15 приведено распределение химических элементов в обл. 20 (см. рис. 18, б).

На рис. 19 приведены СЭМ-изображения различных участков разрезанной втулки (а, б) с выделенной областью, в которой сделан РМЗА, и соответствующий ей ХСРИ (в). А в табл. 16 см. распределение химических элементов, полученное в этой области.

Представляется важным также отразить в этом разделе элементный состав, определенный с помощью РМЗА, на резьбовых ответных частях, в месте соединения входного окна из бериллиевой бронзы (рис. 1, поз. 4) и сборника продуктов ядерных и химических реакций (рис. 1, поз. 12). Эти резьбовые соединения хорошо видны слева и справа на рис. 9, а, а сама резьба показана на рис. 9, б.

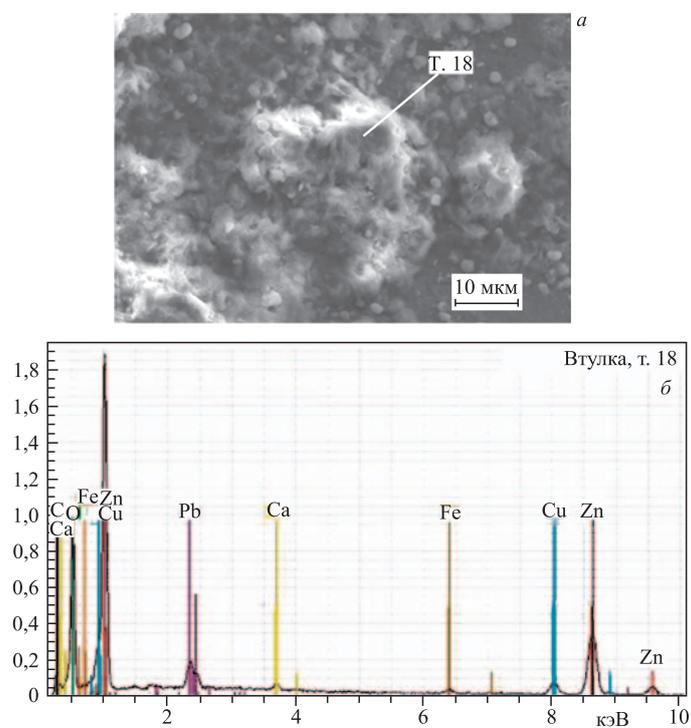


Рис. 16. Участок поверхности внутренней центральной части разрезанной втулки с выделенной г. 18 (а) и соответствующий ХСРИ (б)

Таблица 13. Распределение химических элементов в г. 18 рис. 16

Элемент	Z	Серия	C, вес. %	C, ат. %	ΔC , вес. %	Cu/Zn
Свинец	82	L	4,50	0,57	0,39	—
Цинк	30	K	43,84	17,59	1,33	—
Медь	29	K	5,57	2,30	0,24	0,13
Железо	26	K	0,86	0,40	0,08	—
Кальций	20	K	0,56	0,36	0,06	—
Кислород	8	K	34,47	56,50	5,02	—
Углерод	6	K	10,20	22,28	2,41	—

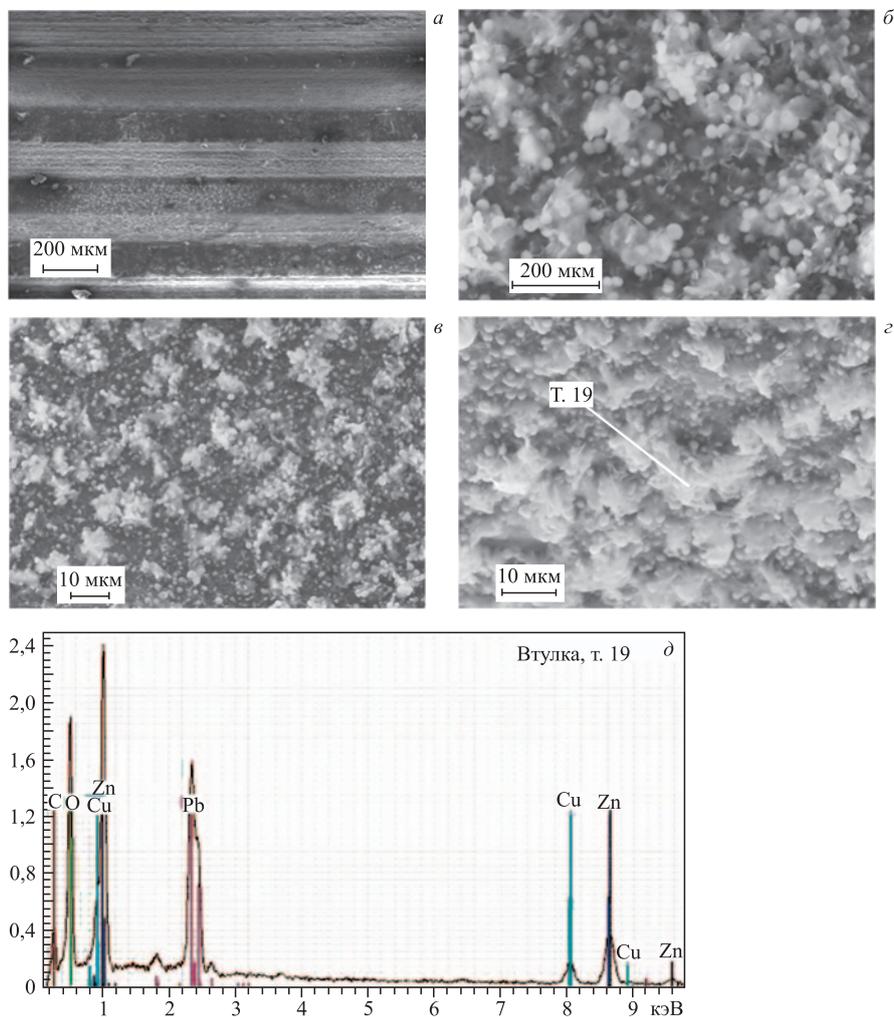


Рис. 17. СЭМ-изображения различных участков разрезанной втулки с выделенной точкой (а–с), в которой проведен РМЗА, и соответствующий ХСРИ (д)

Таблица 14. Распределение химических элементов на рис. 17, д в т. 19

Элемент	Z	Серия	C, вес. %	C, ат. %	ΔC, вес. %	Cu/Zn
Свинец	82	L	27,31	3,72	1,11	—
Цинк	30	K	21,53	9,29	0,65	—
Медь	29	K	6,93	3,07	0,26	0,13
Кислород	8	K	34,08	60,09	4,56	—
Углерод	6	K	10,15	23,83	1,94	—

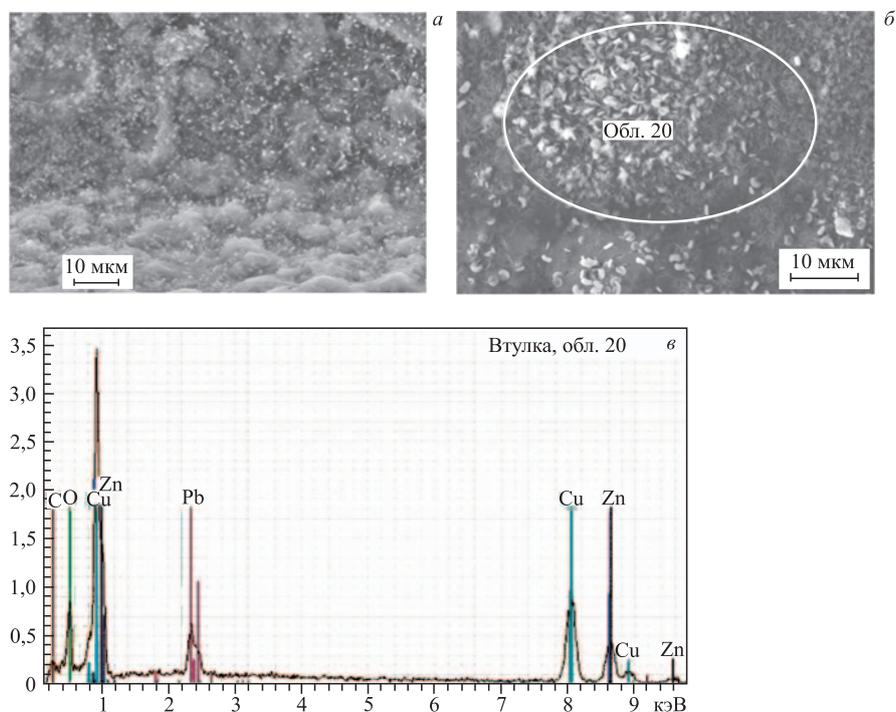


Рис. 18. СЭМ-изображения различных участков разрезанной втулки с выделенной областью (а, б), в которой проведен РМЗА, и соответствующий ей ХСРИ (в)

Таблица 15. Распределение химических элементов в обл. 20 рис. 18, б

Элемент	Z	Серия	C, вес. %	C, ат. %	ΔC , вес. %	Cu/Zn
Свинец	82	L	10,34	1,74	0,86	—
Цинк	30	K	23,21	12,41	0,88	—
Медь	29	K	40,61	22,34	1,32	1,80
Кислород	8	K	16,12	35,22	3,33	—
Углерод	6	K	9,72	28,28	3,00	—

На рис. 20 представлены СЭМ-изображения поверхностей входного окна сразу после винилового уплотнения, которое не имело прямого контакта с внутренней частью латунной втулки (а), и на резьбе между входным окном из бериллиевой бронзы (рис. 1, поз. 4) и латунной втулкой (рис. 1, поз. 8) (б), а также соответствующие им ХСРИ, измеренные в выделенных областях (в и г соответственно). В табл. 17 отображены элементные составы областей 1 и 2.

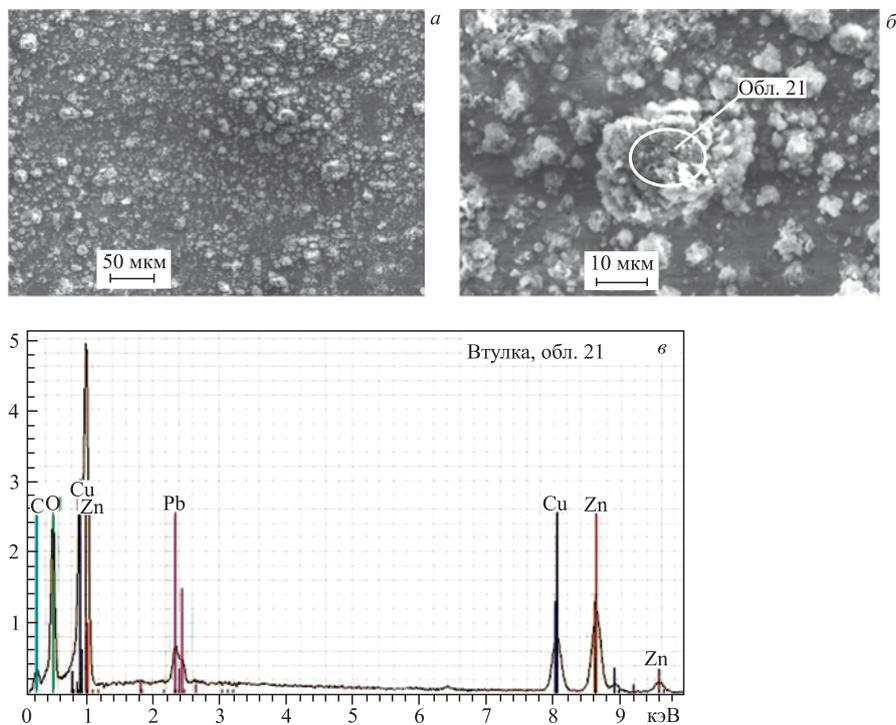


Рис. 19. СЭМ-изображения различных участков разрезанной втулки (а, б) с выделенной областью, в которой проведен РМЗА, и соответствующий ей ХСРИ (в)

Таблица 16. Распределение химических элементов в обл. 21 рис. 19, б

Элемент	Z	Серия	C, вес. %	C, ат. %	ΔC , вес. %	Cu/Zn
Свинец	82	L	5,56	0,80	0,34	—
Цинк	30	K	38,72	17,72	1,04	—
Медь	29	K	19,97	9,41	0,56	0,53
Железо	26	K	0,41	0,22	0,05	—
Кислород	8	K	26,09	48,80	3,35	—
Углерод	6	K	9,25	23,05	1,80	—

В бериллиевой бронзе основной химический элемент — это медь ($\approx 98\%$) и сопутствующая примесь — это бериллий ($\approx 2\%$). После воздействия γ -квантов состав изменился, но на резьбовой части входного окна, так же как и на ответной резьбе (см. рис. 13–15 и табл. 11–13), присутствует в большом количестве свинец (14,62 вес. %).

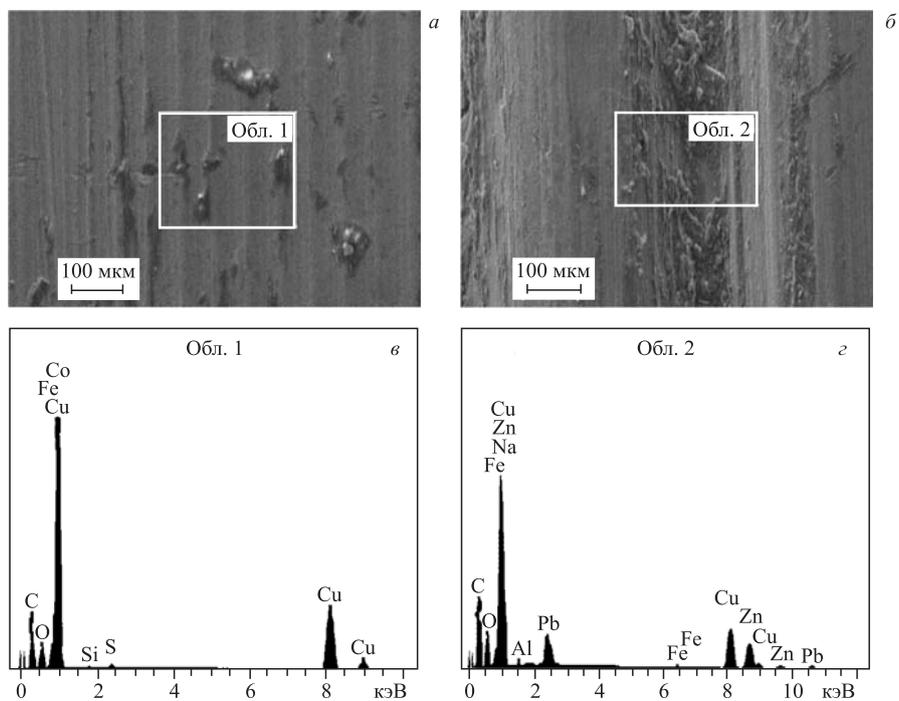


Рис. 20. СЭМ-изображения поверхностей входного окна без резьбы (а) и с резьбой (б) и соответствующие выделенным областям 1 и 2 ХСРИ (в, г)

Таблица 17. Распределение элементов в областях 1 и 2 рис. 20, а, б

Элемент	C, вес. %	C, ат. %
Обл. 1, без резьбы		
C K	30,0	61,13
O K	10,1	15,52
Si K	0,2	0,17
S K	0,47	0,36
Fe K	0,17	0,08
Co K	0,17	0,07
Cu K	58,8	22,68
Обл. 2, с резьбой		
O K	12,47	37,50
Na K	3,18	6,66
Al K	0,51	0,91
Fe K	0,50	0,43
Cu K	37,92	28,47
Zn K	30,77	22,63
Pb M	14,62	3,39

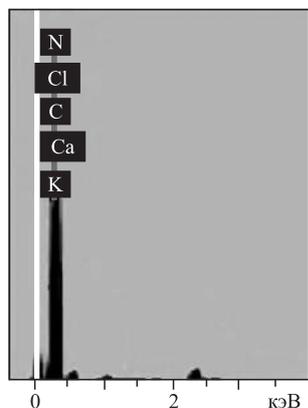


Таблица 18. Элементный состав винилового кольца

Элемент	C, вес. %	C, ат. %
C K	86,35	90,30
N K	2,09	1,87
O K	8,94	7,02
S K	1,24	0,48
Cl K	0,14	0,06
K K	0,07	0,02
Ca K	0,08	0,03
Cu K	0,28	0,06
Zn K	0,77	0,15

Рис. 21. ХСРИ винилового кольца

На рис. 21 представлен спектр уплотнительного кольца из винила, расположенного на входном окне, где отсутствует резьба. В табл. 18 дан элементный состав винилового уплотнительного кольца.

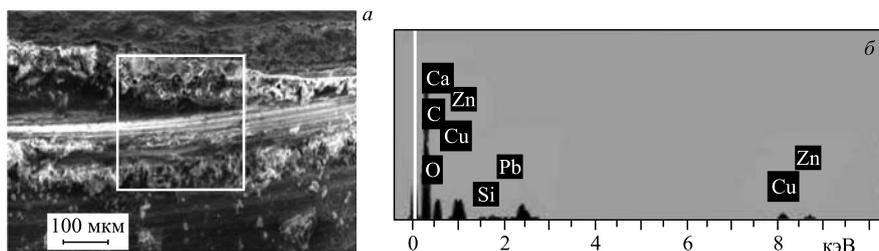


Рис. 22. СЭМ-изображение резьбы латунного сборника (а), ответной к резьбе латунной втулки, а также соответствующий выделенной области ХСРИ (б)

Таблица 19. Концентрация элементов в выделенной области рис.22,а на резьбе латунного сборника, ответной к резьбе латунной втулки

Элемент	C, вес. %	C, ат. %
C K	56,12	75,72
O K	18,90	19,22
Si K	0,26	0,15
Ca K	0,12	0,05
Fe K	0,72	0,21
Cu K	8,56	2,16
Zn K	7,48	1,89
Pb M	7,70	0,60

Из табл. 18 видно, что кольцо состоит из легких элементов, хотя имеются и малые количества меди и цинка, видимо, из-за плотного касания кольца с гладкой частью входного окна (рис. 1, поз. 4).

На рис. 22 представлена резьба латунного сборника (а) (см. рис. 1, поз. 12), ответная к резьбе латунной втулки (рис. 1, поз. 8), а также соответствующую

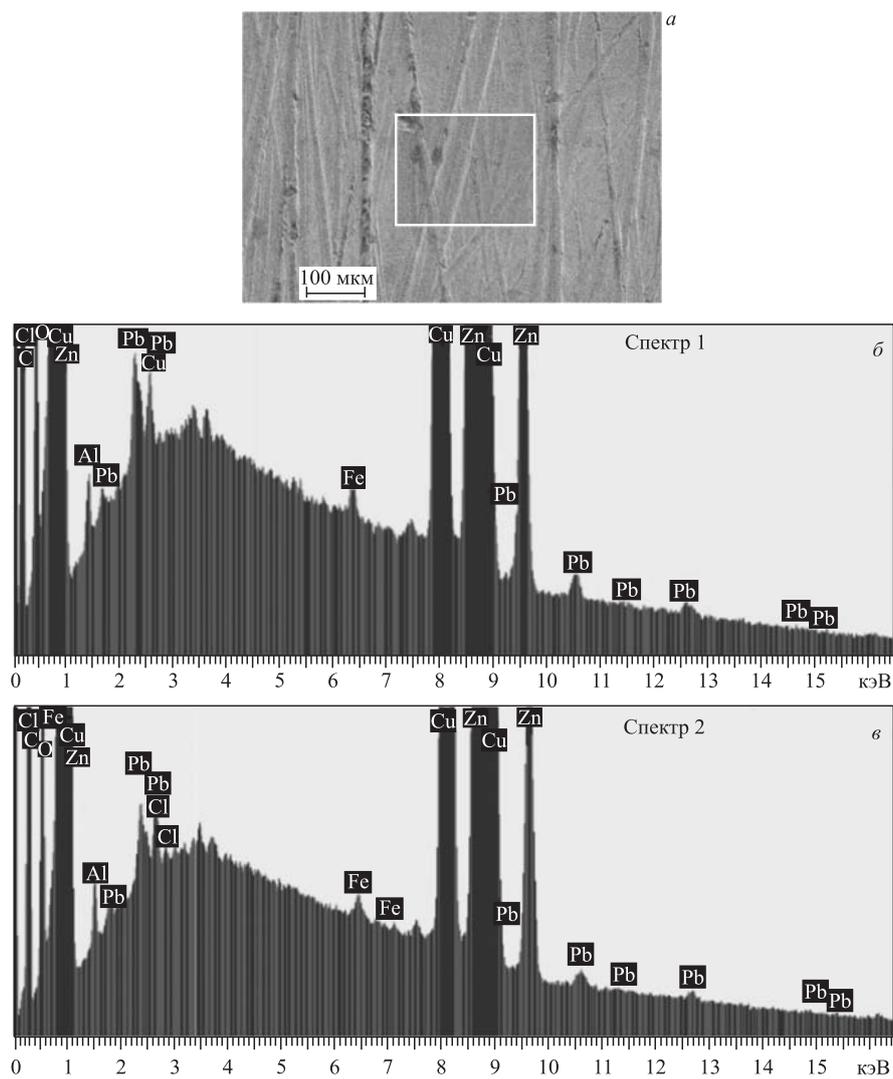


Рис. 23. СЭМ-изображение обратной стороны латунной втулки (а) и ХСРИ с выделенного участка: центр (б) и край (в) обратной стороны втулки

щий ХСРИ (б). В табл. 19 приведено распределение элементов с выделенного участка, показанного на рис. 22, а.

На рис. 23, а представлено СЭМ-изображение обратной стороны латунной втулки (рис. 1, поз. 8), а на рис. 23, б, в — ХСРИ, измеренные с выделенного участка ближе к середине втулки и с краю, ближе к внутренней резьбе втулки. В табл. 20 дан элементный состав этого участка, соответствующий спектрам 1 и 2 рис. 23, б и в.

Таблица 20. Элементный состав выделенного участка на рис. 23, а

Элемент	C, вес. %	C, ат. %	Cu/Zn
Спектр 1			
⁶ C K	32,53	64,70	—
⁸ O K	9,09	13,57	—
¹³ Al K	0,35	0,31	—
¹⁷ Cl K	0,16	0,11	—
²⁹ Cu K	33,91	12,75	1,46 (вес. %)
³⁰ Zn K	23,23	8,49	1,50 (ат. %)
⁸² Pb L	0,73	0,08	—
Спектр 2			
⁶ C K	40,28	71,36	—
⁸ O K	2,82	11,72	—
¹³ Al K	0,29	0,23	—
¹⁷ Cl K	0,14	0,08	—
²⁹ Cu K	29,91	10,02	1,49 (вес. %)
³⁰ Zn K	20,12	6,55	1,53 (вес. %)
⁸² Pb L	0,44	0,04	—

Из табл. 20 можно сделать вывод, что обратная сторона латунной втулки, находящаяся в непосредственной близости к стенке камеры высокого давления из бериллиевой бронзы (рис. 1, поз. б), заполненной плотным дейтерием, претерпела изменения в элементном составе, в частности, обнаружено небольшое количество свинца: 0,73 вес. % (центр, спектр 1) и 0,44 вес. % (край, спектр 2). Этот факт свидетельствует о том, что соединения свинца (скорее всего, оксиды) во взвешенном (летучем) состоянии в плотном дейтерии (1,2 кбар давления) могли осесть не только на внутренней гладкой (без резьбы) стороне, на двух резьбах с обеих сторон и на ответных частях к резьбам латунной втулки, но и на обратной ее стороне в малых количествах.

3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Как было представлено в работе [1], исходная масса Pd-стержня составляла $M_{\text{Рd}}^0 = 0,7509$ г. После облучения γ -квантами масса Pd-стержня оказа-

лась равной $M_{\text{Pb}}^{\text{ir}} = 0,71845$ г. Следовательно, абсолютное изменение массы Pd-стержня составило $\Delta M_{\text{Pd}} = M_{\text{Pd}}^0 - M_{\text{Pd}}^{\text{ir}} = 0,03245$ г (относительное изменение массы составляет 4,3 %). Как показали методы СЭМ и РМЗА, в этой работе и в [1] практически вся внутренняя поверхность всех конструкций, входящих в ДНРС, а именно: входного окна (рис. 1, поз. 4), включая присутствующую на нем внешнюю резьбу вплоть до уплотнения для высокого давления (рис. 1, поз. 5), внутренних стенок латунной втулки (рис. 1, поз. 8), включая внутреннюю резьбу с обеих ее сторон, Pd-стержня (рис. 1, поз. 9), латунного сборника (рис. 1, поз. 12) с внешней резьбой на нем — покрыта частицами свинца различных размеров. Также обнаружены как более тяжелые (^{19}K , ^{20}Ca , ^{22}Ti , ^{24}Cr , ^{25}Mn , ^{26}Fe , ^{29}Cu , ^{30}Zn , ^{46}Pd , ^{74}W , ^{78}Pt , ^{79}Au), так и более легкие химические элементы (^6C , $^8\text{O}\downarrow\uparrow$, $\text{Ne}\uparrow$, ^{11}Na , ^{12}Mg , ^{13}Al , ^{14}Si , ^{15}P , ^{16}S , ^{17}Cl , $^{18}\text{Ag}\uparrow$) (см. [1]).

Тогда по оценкам, сделанным в [1] и подтвержденным экспериментальными измерениями и РМЗА в данной работе, общее количество свинца может достигать практически микроскопических количеств, а именно $< 9,42 \cdot 10^{19}$ атомов Pb, во внутреннем объеме ДНРС, который был заполнен плотным дейтерием при давлении примерно 1,2 кбар.

В отличие от результатов работ, в которых была синтезирована новая структура с относительно высоким содержанием рутила [2–4], в данной работе при облучении ДНРС была использована большая плотность потока γ -квантов (ток электронного пучка был увеличен примерно в два раза), суммарное время облучения было в три раза дольше, а давление молекулярного дейтерия внутри камеры составляло примерно 1,2 кбар.

Размеры частиц свинца при этом оказались местами значительными — до 50 мкм [1]. Частицы свинца или его оксидов покрыли весь внутренний объем и все элементы конструкции ДНРС, а это могло произойти только в случае, если свинец или, скорее всего, его соединения (оксиды) находились в виде пара.

Отметим, что авторы данной работы провели независимый эксперимент по облучению γ -квантами образцов свинца (99,8 %) в виде трех цилиндров диаметром 2 мм и длинами примерно по 10 мм, расположенных вдоль протяженной камеры ДНРС (см. описание в [5, 6]) в атмосфере дейтерия при его плотности 400–500 бар. Предварительный осмотр не выявил процессов с образованием расплавленных и застывших частиц свинца, хотя детальных измерений методами СЭМ и РМЗА образцов свинца пока проведено не было.

Объяснить столь значительные количества образовавшегося свинца можно, лишь используя не вполне обоснованные предположения в [1], предложенную феноменологическую схему ядерных реакций [7] или вводя новые предположения.

Как и в работах [1–6], процессы деления ядер палладия с передачей большого углового момента под действием ядерных реакций с нейтронами и

протонами из реакции фоторасщепления дейтрона под действием γ -квантов и «нагретых» дейтронов (реакция Оппенгеймера [8]) не запрещены в рамках капельной модели ядра с большими угловыми моментами (см. [9–11]). Образование свинца из более легких продуктов распада палладия, таких как криптон или с большим зарядом ядра, и самого палладия невозможны из-за законов сохранения энергии. Квазиклассический подход с введением двухгорбого ион-ионного потенциала, описывающего резонансное подбарьерное слияние сферических ядер среднего атомного номера (типа ${}_{40}\text{Zr} + {}_{40}\text{Zr}$), был развит в работах [12–14]. Два барьера позволяют сталкивающимся ядрам находиться на малых расстояниях друг от друга длительное время, что делает возможным образование общей электронной оболочки в системе даже без составного ядра.

Тем не менее без введения дополнительных предположений о возможных коллективных эффектах в механизмах ядерных реакций в плотном дейтерии под действием облучения γ -квантами, по-видимому, не удастся объяснить даже на качественном уровне наблюдаемых значительных количеств вновь образованных элементов.

Понятие коллективных эффектов также необходимо при попытках объяснить стабилизацию двойных ядерных систем за счет захвата электронов и нейтрализации такой системы работы по изменению периода полураспада β^- -распадных или стабильных ядер при удалении электронов (см. [15–17]).

ЛИТЕРАТУРА

1. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р., Вилчинска-Китовска Т. Исследование изменений структуры поверхности и элементного состава Pd-стержня и сборника продуктов ядерных и химических реакций, облученных 10-МэВ γ -квантами в плотном дейтерии. Препринт ОИЯИ Р15-2013-15. Дубна, 2013. 32 с.
2. Didyk A. Yu., Wiśniewski R. Chemical Composition and Structural Phase Changes of Novel Synthesized Structure and of Pd Sample under γ -Quanta Irradiation in Dense Deuterium Gas // Part. Nucl., Lett. 2012. V.9, No. 8. P.615–631; JINR Preprint E15-2012-34. Dubna, 2012. 26 p.
3. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Синтез новых структур в плотном газообразном дейтерии и насыщенном дейтерием палладии при ядерных реакциях, инициированных γ -квантами // Физика и химия обработки материалов. 2012. №5. С. 5–13; Препринт ОИЯИ Р15-2012-50. Дубна, 2012. 16 с.
4. Didyk A. Yu., Wiśniewski R. Nuclear Reactions, Induced by Gamma Quanta, in Palladium Saturated with Deuterium Surrounded by Dense Deuterium Gas // Eur. Phys. Lett. (EPL). 2012. V. 99. P. 22001-P1–22001-P6.
5. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Изменения поверхности, объемных свойств образцов ванадия и нержавеющей стали, облученных в плотном газообразном дейтерии

- γ -квантами с пороговой энергией 23 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2012-75. Дубна, 2012. 15 с.; Письма в ЖЭТФ. 2013 (в печати).
6. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Ядерные реакции в насыщенном дейтерием палладии и рении в атмосфере плотного дейтерия при облучении γ -квантами непрерывного спектра с граничной энергией 23 МэВ // Письма в ЭЧАЯ. 2013. Т. 10, № 4(181). С. 603–621; Препринт ОИЯИ Р15-2012-63. Дубна, 2012. 22 с.
 7. Didyk A. Yu., Wiśniewski R. Phenomenological Nuclear Reaction Description in Dense Deuterium Gas under γ -Quanta Irradiation // Part. Nucl., Lett. 2013. V. 10, No. 3(180). P. 437–457; JINR Preprint E15-2012-35. Dubna, 2012. 25 p.
 8. Oppenheimer J. R., Phillips M. Note for the Transmission Functions for Deuteron // Phys. Rev. 1935. V. 48, No. 15. P. 500–502.
 9. Moretto Luciano G. Statistical Emission of Large Fragments: A General Theoretical Approach // Nucl. Phys. A. 1975. V. 247. P. 211–230.
 10. Sierk A. J. Mass-Assymmetric Fission of Light Nuclei // Phys. Rev. 1985. V. 55, No. 6. P. 582–583.
 11. Sierk A. J. Macroscopic Model of Rotating Nuclei // Phys. Rev. 1986. V. 55, No. 6. P. 2039–2052.
 12. Шилов В. М. Подбарьерное слияние сферических ядер среднего атомного номера // ЯФ. 2012. Т. 75, № 4. С. 485–490.
 13. Тараканов А. В., Шилов В. М., Шмидт Р. Квазиклассическое описание слияния тяжелых ядер при околобарьерных энергиях // ЯФ. 1991. Т. 53, № 5. С. 1285–1291.
 14. Пермяков В. П., Шилов В. М. Подбарьерное слияние сложных ядер // ЭЧАЯ. 1989. Т. 20, вып. 6. С. 1396–1435.
 15. Bosch F. et al. Beta Decay of highly Charged Ions.
<http://www-ap.gsi.de/research/posters/betadecay/betadecayhcinohtml4entities.html>.
 16. Bosch F. et al. Observation of Bound-State β Decay of Fully Ionized ^{187}Re : ^{187}Re – ^{187}Os Cosmochronometry Decay // Phys. Rev. Lett. 1996. V. 77, No. 26. P. 5190–5193.
 17. Jung M. et al. First Observation of Bound-State β Decay // Phys. Rev. Lett. 1992. V. 69, No. 15. P. 2164–2167.

Получено 4 марта 2013 г.

Редактор *А. И. Петровская*

Подписано в печать 09.07.2013.

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

Усл. печ. л. 1,93. Уч.-изд. л. 2,37. Тираж 225 экз. Заказ № 58021.

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

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/