

Синтез химических элементов и твердотельных структур при облучении гамма квантами конденсированных газов

Р. Вишневский², Г.В. Мышинский¹, Г.Г. Гульбекян¹, Т. Вилчиньска-Китовска², В.А. Семин¹

Аннотация—Камеры высокого давления газов: водорода, дейтерия, гелия и ксенона, облучались тормозными гамма квантами с максимальной энергией 10 МэВ в течение десятков часов. После облучения на внутренних поверхностях камер были обнаружены образовавшиеся твердотельные микрообъекты в виде кристаллических и аморфных микрочастиц, нитей, наплывов и вкраплений. Исследования элементного состава выявленных структур, проведенные с помощью рентгеновского микрозондового анализа, показали наличие в них химических элементов, отсутствующих в реакционной камере до облучения. Были зарегистрированы химические элементы в диапазоне от углерода до висмута.

Памяти Александра Дидыка.

I. Введение

Первый эксперимент по синтезу новых структур и химических элементов под действием тормозных гамма квантов был проведен Дидыком А.Ю. и Вишневским Р. с образцом палладия Pd в виде цилиндра, помещенном в камеру высокого давления дейтерия (DHPC) (рис.2) при давлении последнего ~ 3 кбар [1], [2], [3], [4], [5]. Облучение проводилось в течение ~ 6 часов на микротроне МТ-25 [6] Лаборатории Ядерных Реакций им. Г.Н. Флерова ОИЯИ с энергией электронов 9.3 МэВ при среднем токе электронов ~ $4.4 \cdot 10^{13}$ c⁻¹. В результате облучения в реакционной камере были обнаружены необычные твердотельные структуры, которые содержали "посторонние" химические элементы, отсутствующие в реакционной камере до начала эксперимента. Были зарегистрированы такие элементы, как: Na, Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Fe, Nb, Ru, Ag, La, W, Pt, Pb. Затем были проведены подобные исследования с образцами других металлов и сплавов: Al, V, Cu, Sn, Re, YMn₂, в виде цилиндров и Журнал Формирующихся Направлений Науки номер 17-18(5), стр. 6-15, 2017 ©Авторы, 2017 статья получена: 27.08.2017 статья принята к публикации: 10.12.2017 http://www.unconv-science.org/n17/vishnevskiy/ ©Association of Unconventional Science, 2017

проволок. Образцы находились в атмосфере газообразного дейтерия при высоком давлении в тысячи бар, и облучались тормозным гамма излучением с $E_{max} = 10$ МэВ и $E_{max} = 23$ МэВ [7], [8], [9], [10], [11]. При таких давлениях плотность атомов газов сравнима с плотностью атомов в твердом теле и жидкостях. Поэтому, далее употребляется термин - конденсированный газ. Положительные результаты по синтезу новых структур и "посторонних" элементов в атмосфере дейтерия привели к проведению аналогичных исследований с конденсированным водородом с палладиевым [12], [13], [14] и оловянным [15], [16], [17] цилиндрами внутри и с конденсированным гелием с палладиевым цилиндром внутри [18], [19].

Такие же исследования были выполнены в камерах с конденсированными, чистыми (≥ 99,999) газами: водородом H_2 [20], [21], [22], дейтерием D_2 , гелием ⁴Не [23], [24], [25], [26] и ксеноном Хе [27], [28], [29], [30], [31] при облучении их тормозными γ -квантами с $E_{max} = 10$ МэВ. Облучения проводились без каких-либо металлических образцов внутри реакционных камер, но со всеми втулками и сборниками внутри них. Во всех экспериментах после окончания облучений в реакционных камерах были обнаружены вновь образованные объекты: микрочастицы размером от $0.5 \ \mu$ до 1mm, а на стенках реакционных камер аномальные твердотельные структуры. Твердотельные структуры представляли собой: кристаллические, аморфные и каплеобразные структуры; рыхлые и твердые вкрапления и наплывы на поверхностях втулок и уплотняющих бериллиевых окнах; кольцеобразные, нитевидные и трубчатые образования длиной от 5 μ до 0.5 мм. С помощью методов растровой электронной микроскопии (РЭМ) и рентгеновского микрозондового анализа (РМЗА) исследовался элементный состав внутренних поверхностей втулок и сборников, а также образовавшихся в результате облучений на внутренних поверхностях камеры аномальных структур и микрочастиц. В большинстве объектах, при их исследовании с помощью методов РЭМ и РМЗА, были зарегистрированы "посторонние" химические элементы, отсутствующие в реакционных камерах до начала облучений. Диапазон "посторонних" элемен-

¹Лаборатория ядерных реакций им. Г.Н.Флерова, 141980 Дубна, Московская область, *mysh@jinr.ru*.

²Варшавский технологический университет, Варшава, Польша roland.wisniewski@gmail.com.

тов простирается от углерода до висмута. В отдельных экспериментах зарегистрированы радиоактивные элементы: технеций, франций, актиний.

Для каждой выбранной для исследования микрочастицы или твердотельной структуры были проведены несколько измерений РМЗА в разных точках. Каждому такому измерению соответствует свой набор химических элементов со своей концентрацией. Общее количество полученных РМЗА для конкретного эксперимента составляло несколько десятков. В данной статье мы приводим усредненные концентрации химических элементов по многим измерениям. Результаты исследований в виде гистограмм приводятся в этом обзоре. Краткий обзор экспериментов в газах H_2 , D_2 и He представлен в [32], [33]. Подробная, первичная информация по проведенным экспериментам содержится в статьях с [19] до [32].

II. Методика экспериментов

Облучения камер высокого давления (НРС) проводились тормозными гамма квантами с максимальной энергией 10 МэВ на ускорителе электронов МТ-25 ЛЯР ОИЯИ. Энергии гамма квантов < 10 МэВ находятся ниже характерных энергий возбуждения гигантского дипольного резонанса. Это не позволяет активировать конструкционные материалы реакционных камер, поскольку распад гигантского дипольного резонанса происходит в основном с испусканием протона и нейтрона $[A(\gamma,p), A(\gamma,n) - где A-ядро элемента].$ Ток электронов на вольфрамовом конвекторе-диске диаметром 40 мм и толщиной 2.5 мм (1 мм в экспериментах с ксеноном), преобразующим поток электронов в гамма кванты, составлял $(1-1,5)\cdot 10^{14}$ с⁻¹. Диаметр пучка электронов 6-7 мм. Расходимость пучка гамма квантов на полувысоте интенсивности составляла по горизонтали $10^{\circ} \pm 1^{\circ}$ и $8^{\circ} \pm 1^{\circ}$ по вертикали. За конвектором вплотную располагался поглотитель электронов толщиной 25 мм (12 мм в экспериментах с ксеноном), изготовленный из дюраля алюминия Д16Т. Облучение проводилось по 7-8 часов в день. В каждом эксперименте использовались свои реакционная камера и вкладыши к неё.

Исследования РЭМ и РМЗА проводились в трех независимых сертифицированных лабораториях: в аналитическом центре НИИЯФ им. Д.В. Скобельцына МГУ; в ФГБНУ "Научно-исследовательский институт перспективных материалов и технологий" и в Научном Центре Волоконной Оптики РАН. Энергия электронного пучка, возбуждающего рентгеновское излучение, варьировалась от 10 до 20 кэВ. Глубина проникновения электронного пучка составляла 1-2 мкм. Измерения проводились в двух режимах: в "точке" и по "площади". Для режима в "точке" площадь измерения составляла ~ 1-4 мкм². Для режима по "площади" область измерения составляла более 20х20мкм². В качестве примера на рис.1а, в представлены увеличенные РЭМизображения частиц, синтезированных в одном из экспериментов с чистым ксеноном. На рис.1с, d приведены

спектры в "точке" (Спектр 36) и по "площади" (Спектр 42), сделанные с помощью РМЗА.



Рис. 1. а,b – РЭМ - изображения синтезированных частиц; с,d - спектры в "точке" и по "площади", сделанные с помощью РМЗА.

Отметим несколько важных моментов в наших РЭМ и РЗМА исследованиях:

 программа обработки спектров, полученных с помощью P3MA, отбирает только линии тех элементов, которые превышают не менее, чем в три раза ошибку измерения;

- расчетная программа сама рассчитывает оце-

ночные концентрации элементов в весовых и в атомных процентах при наличии в спектре главных характеристических рентгеновских линий данного элемента;

- приведенные концентрации "посторонних" элементов в объектах имеют не количественный, а качественный характер. Выбор объектов для измерений носил исключительно субъективный характер. Как правило, обмерялись наиболее привлекательные, яркие, светлые объекты с наличием элементов с большими атомными номерами;

- в качестве объектов для измерений, как правило, выбирались микрочастицы и структуры, расположенные на поверхности сборников, вкладышей и втулок;

- для достоверной обработки спектров требуется набор значительной статистики, который в наших измерениях не всегда производился;

 размеры изучаемых структур были значительно но больше, чем область возбуждения и эмиссии характеристического рентгеновского излучения. Поэтому сделанные измерения могут не соответствовать концентрации элементов во всем объеме обмеряемых объектов;

- при измерении объектов в "точке" локальная концентрация вновь образовавшихся элементов могла составлять несколько десятков процентов. Кроме того, такие измерения имеют ограничения, связанные с пространственным разрешением применяемого оборудования.

III. Эксперименты по синтезу химических элементов в водороде

В экспериментах по синтезу химических элементов в конденсированном водороде [20], [21], [22], использовались два типа камер высокого давления (ННРС) рис. 2 и рис. 3. Камера, изображенная на рис.2, без металлического образца внутри (9) использовалась при давлениях водорода 1 кбар. Измеренный методом РМЗА состав латунных втулки (8) и сборника (12) включает: Си 59.61 и Zn 40.39 (атомных %). Камера рис. 3 использовалась при давлении водорода 3.4 кбар. Корпус камеры (6, рис. 3) и входное, уплотняющее металл по металлу (4), окно были изготовлены из бериллиевой бронзы $Cu_{0.98}Be_{0.02}$. В корпус камеры вставлялись втулка (8) и сборник (9), изготовленные из чистой меди – 99.99%.

Внутренние размеры камеры, заполненной водородом (7), составляли: длина – 15 мм, диаметр – 8 мм, объем – 0.75 см³. Давление водорода после заполнения им ННРС перед началом облучения контролировалось с помощью датчика давления (10) в течение нескольких недель. После окончания облучений водород выпускался из ННРС в окружающую среду и камера вскрывалась.

В табл. 1 представлены параметры облучений [20], [21], [22]: Р – давление в начале облучения; ΔP – разница давлений в начале и в конце облучения; ρ



Рис. 2. Камера высокого давления водорода 1 кбар.



Рис. 3. Камера высокого давления H₂ - 3,4 кбар, D₂ и He.



Рис. 4. Частицы, синтезированные в экспериментах: а – P=1 кбар; b – P=3.4 кбар.



Рис. 5. Элементный состав, усредненный по 15 измерениям.

– атомная плотность; T – время облучения; I - ток



Рис. 6. Сравнение концентраций элементов для разных давлений водорода.



Рис. 7. Концентрации элементов, усредненные по 28 измерениям всех экспериментов с *H*₂.

электронов.

Во всех экспериментах после окончания облучений в реакционных камерах были обнаружены вновь образованные объекты, простые и сложные микроструктуры. В эксперименте с P=1 кбар из латунной втулки выпали восемь частиц размерами около 1 мм. Фото одной из этих частиц размером ~700х630 мкм представлено на рис.4а. В эксперименте с P=3.4 кбар из камеры HHPC выпала одна черная частица (рис. 4b), состоящая преимущественно из углерода.

На рис. 5 для эксперимента, выполненного при давлении P=1.0 кбар, приведены концентрации элементов, усредненные по 15 измерениям разных объектов, сделанных в "точках" [20], [21]. Наряду с легкими химическими элементами от углерода $_6C$ до цинка $_{30}Zn$, в этом эксперименте обнаружен свинец $_{82}Pb$.

На рис. 6 представлено сравнение усредненных концентраций элементов, зарегистрированных в разных экспериментах с давлением водорода 1.0 и 3.4 кбар. В случае 3.4 кбар усреднение проводилось по 13 измерениям [22]. Наряду с легкими химическими элементами от углерода ${}_{6}C$ до цинка ${}_{30}Zn$, в этом эксперименте обнаружен барий ${}_{56}Ba$.

Все измерения были сделаны в "точках". Общим для двух распределений по химическим элементам является наличие группы легких элементов от углерода $_6C$ до цинка $_{30}Zn$. Как видно из рис. 6, в этом диапазоне элементов распределения похожи друг на друга.

На рис. 7 приводится усредненное содержание химических элементов, зарегистрированных в двух экспериментах по 28 (15+13) измерениям. В обнаруженных микрочастицах и структурах зарегистрированы следующие ранее отсутствовавшие в реакционной камере химические элементы: ${}_{6}C$, ${}_{7}N$, ${}_{8}O$, ${}_{9}F$, ${}_{10}Ne$, ${}_{11}Na$, ${}_{12}Mg$, ${}_{13}Al$, ${}_{14}Si$, ${}_{15}P$, ${}_{16}S$, ${}_{17}Cl$, ${}_{19}K$, ${}_{20}Ca$, ${}_{22}Ti$, ${}_{24}Cr$, ${}_{25}Mn$, ${}_{26}Fe$, ${}_{28}Ni$, ${}_{56}Ba$, ${}_{82}Pb$.

IV. Эксперимент по синтезу химических элементов в дейтерии

В эксперименте по синтезу химических элементов в конденсированном дейтерии [32], [33] использовалась камера высокого давления (DHPC) рис. 3. Давление в камере было 2,2 кбар. Наполнение дейтерием камеры высокого давления DHPC осуществлялось с предварительным трехкратным повторением операции: заполнение камеры дейтерием до давления 150 бар, сброс давления до атмосферного и опять заполнение дейтерием до 150 кбар. Степень очистки от атмосферных газов составила ~ $(1/150)^3 \approx 3 \cdot 10^{-7}$. Давление дейтерия после заполнения им DHPC перед началом облучения контролировалось с помощью датчика давления (10) в течение более двух недель. За это время давление в камере не изменилось. При давлении дейтерия 2,2 кбар его атомная плотность $n_{D_2} \sim 10^{22}$ мол. D·см⁻³, а массовая плотность $\rho_{D_2} \sim 67 \text{ мг} \cdot \text{см}^{-3}$ [34].

Облучение DHPC было проведено в течение $1,76 \cdot 10^5$ с. Ток электронов составлял $(1.2 \cdot 1,3) \cdot 10^{14}$ с⁻¹. Интегральный поток электронов на тормозную мишень за полное время облучения составил $\Phi \approx 2,5 \cdot 10^{19}$ е⁻. После завершения облучения давление в камере DHPC измерялось в течение одного месяца. Утечки газа не было.

После окончания облучения дейтерий выпускался из DHPC в окружающую среду и камера вскрывалась. При вскрытии DHPC в устройстве для напуска газа и измерения его давления (рис.3, поз.10) за уплотнением металл по металлу были обнаружены капли похожие на жидкие углеводороды и несколько видимых частиц с размерами до 1 мм. На внутренних поверхностях DHPC были обнаружены образовавшиеся твердотельные микрообъекты в виде кристаллических и аморфных микрочастиц, нитей, стержней, наплывов и вкраплений.

Исследования элементного состава выявленных структур показали наличие в них химических элементов, отсутствующих в реакционной камере до облучения.

Принимая во внимания всю совокупность данных, полученных методом P3MA, можно утверждать, что в эксперименте по облучению гамма квантами конденсированного дейтерия не наблюдается существенного различия в распределениях химических элементов для входного окна, втулки, сборника и частиц. Однако, во многих структурах, обнаруженных на поверхности втулки, зарегистрированы химические элементы: ${}_{33}As$, ${}_{50}Sn$, ${}_{82}Pb$. Как известно, ядра ${}_{50}Sn$ и ${}_{82}Pb$ имеют замкнутые оболочки по протонам (Z=50 и Z=82), а свинец имеет замкнутую оболочку по нейтронам (N=126).



Рис. 8. Концентрация химических элементов, усредненная по 42 измерениям.

Таблица II								
Π араметры облучений								
№	Р, кбар	$\Delta P,$ бар	$ ho, \ { m at/cm}^3$	$\substack{\mathrm{T,}\\\mathrm{c}\cdot10^{-5}}$	${}^{\rm I,\ c^{-1}}_{10^{-14}} \cdot$			
1	1.1	666	$1.5 \cdot 10^{22}$	1.02	1.2 - 1.5			
2	3.05	63	$2.6 \cdot 10^{22}$	1.0	1 - 1.2			

На рис. 8 представлена усредненная концентрация химических элементов по 42 измерениям разных объектов. В обнаруженных микрочастицах и структурах зарегистрированы следующие ранее отсутствовавшие в реакционной камере химические элементы: ${}_{6}C$, ${}_{7}N$, ${}_{8}O$, ${}_{11}Na$, ${}_{12}Mg$, ${}_{13}Al$, ${}_{14}Si$, ${}_{15}P$, ${}_{16}S$, ${}_{17}Cl$, ${}_{19}K$, ${}_{20}Ca$, ${}_{22}Ti$, ${}_{23}Sc$, ${}_{24}Cr$, ${}_{25}Mn$, ${}_{26}Fe$, ${}_{28}Ni$, ${}_{30}Zn$, ${}_{33}As$, ${}_{50}Sn$, ${}_{82}Pb$.

V. Эксперименты по синтезу химических элементов в гелии

В этих экспериментах использовались камеры высокого давления гелия (HeHPC), изображенные на рис.



Рис. 9. Фото графитовых фольг.



Рис. 10. Элементный состав углеродных фольг, усредненный по 4 измерениям.



Рис. 11. Элементный состав, усредненный по 11 измерениям, в эксперименте Не $\mathrm{P{=}}1.1$ кбар.

 В табл. 2 даны параметры облучений [23], [24], [25],
 [26]. После окончания облучений гелий выпускался из НеНРС в окружающую среду и камера вскрывалась. Наиболее впечатляющим результатом в первом эксперименте при давлении 1.1 кбар было обнаружение во внутренней части HeHPC тонких, цилиндрических, черных фольг значительных размеров (5, рис.3). Фольги (рис. 9) преимущественно состояли из углерода и оставляли на бумаге маслянистые следы. Последнее говорит о присутствие на фольгах жидких масел в виде углеводородов и о синтезе водорода. На рис.10 приведен усредненный по 4 измерениям элементный состав этих фольг [23], [24].

Во втором эксперименте при давлении 3.05 кбар углеродных фольг не обнаружено. Предположительно, это связано с небольшим уменьшением давления в камере в процессе облучения: во втором эксперименте оно составило 63 бар, а в первом – 666 бар (табл. 2). РМЗА анализ полученных структур и микрочастиц проводился в режиме "в точке".

На рис.11 приведены усредненные концентрации элементов в атомных процентах в эксперименте с давлением гелия 1.1 кбар. В этом случае усреднение проводилось по 11 измерениям разных объектов [23], [24], [25]. В случае 3.05 кбар усреднение проводилось по 17 измерениям разных объектов [26]. На рис. 12 представлено сравнение усредненных концентраций элементов, зарегистрированных в экспериментах с давлением гелия 1.1 и 3.05 кбар. Из рис. 12 видно, что набор элементов в первом эксперименте с давлением 1.1 кбар богаче, чем во втором эксперименте с давлением 3.05 кбар. Общим для обоих распределений является наличие группы легких элементов от углерода $_{6}C$ до цинка $_{30}Zn$. Наряду с легкими химическими элементами, в первом эксперименте обнаружены: мышьяк ₃₃As, олово ₅₀Sn, теллур ${}_{52}Te$, барий ${}_{56}Ba$, тантал ${}_{73}Ta$ и свинец ${}_{82}Pb$. Во втором эксперименте эти химические элементы не обнаружены. С зарядом ядра Z > 30 присутствует только один элемент – серебро 47 Ад. По-видимому, это отличие так же связано с небольшим уменьшением давления в камере в процессе облучения во втором эксперименте 3.05 кбар. Как видно из рис. 12, в диапазоне элементов от углерода $_{6}C$ до цинка $_{30}Zn$ распределения похожи друг на друга.

Из фактов наличия углеродных фольг и производства химических элементов с Z > 30 в эксперименте с давлением 1.1 кбар и, практически, их отсутствия в эксперименте с давлением 3.05 кбар можно предположить, что скорость реакций синтеза химических элементов зависит от давления гелия. Реакции синтеза идут интенсивнее при давлении 1.1 кбар, чем при давлении 3.05 кбар. По-видимому, имеется оптимальная величина давления газа, при которой скорость реакций, при прочих равных условиях, является максимальной.

На рис. 13 приводятся усредненные концентрации химических элементов, зарегистрированных в обоих экспериментах по 28 (11+17) измерениям. В микрочастицах и структурах, зарегистрированы следующие ранее отсутствовавшие в реакционной камере химические элементы: ${}_{6}C$, ${}_{7}N$, ${}_{8}O$, ${}_{9}F$, ${}_{11}Na$, ${}_{12}Mg$, ${}_{13}Al$, ${}_{14}Si$, ${}_{15}P$, ${}_{16}S$, ${}_{17}Cl$, ${}_{19}K$, ${}_{20}Ca$, ${}_{22}Ti$, ${}_{23}$, ${}_{24}Cr$, ${}_{25}Mn$, ${}_{26}Fe$, ${}_{27}Co$,



Рис. 12. Сравнение концентраций элементов для разных давлений гелия.



Рис. 13. Концентрации химических элементов, усредненные по 28 измерениям всех экспериментов с Не.

 $_{28}Ni, \,_{30}Zn, \,_{33}As, \,_{47}Ag, \,_{50}Sn, \,_{52}Te, \,_{56}Ba, \,_{73}Ta, \,_{82}Pb.$

VI. Эксперименты по синтезу химических элементов в ксеноне

Камера высокого давления ксенона (XeHPC), схематически изображенная на рис. 14, представляет собой цилиндр (2) диаметром 21,3 мм и длиной 112 мм, изготовленный из нержавеющей стали 12X18H10T. Внутренний диаметр цилиндра составляет 13 мм. Передняя стенка цилиндра, направленная в сторону потока гамма квантов (1), имеет толщину 4 мм. Корпус камеры ХеНРС охлаждался водой, протекающей по медной трубке диаметром 5 мм (3). Внутрь стального цилиндра вставлялись друг в друга две втулки. Внешний пенал (4) изготовлен из дюраля алюминия Д16T и имеет внутренний диаметр 11 мм. Внутренняя втулка (6a,b) изготовлена из алюминия и состоял из двух частей: переднего и заднего цилиндров длиной 29 мм, каждый внутренним диаметром 10 мм. Внутренний объем втулки составлял 4,5 см³. Передний и задний сборники (5a,b), также изготовлялись из алюминия. Толщина переднего сборника составляла 2 мм. Внешний пенал использовался для исключения попадания каких-либо частиц во внутренний объем алюминиевых втулок с внутренних стенок цилиндра, выполненного из нержавеющей стали. Элементный состав поверхности исходного алюминия до облучения в атомных процентах дан в табл. 3.



Рис. 14. Камера высокого давления ксенона.

Таблица III Элементный состав поверхности исходного алюминия до облучения, атом. %.

Элемент	\mathbf{C}	0	Mg	Al	Si
По площади	16,12	2,13	0,52	80,59	$0,\!65$
В точке	22,18	2,10	0,11	$75,\!25$	0,36

Таблица IV Параметры облучений

N⁰	Р, бар	ρ ,	Т,	I, c^{-1} ·	$\sum I$,
		${ m at}/{ m cm}^3$	$c \cdot 10^{-5}$	10^{-14}	$\cdot 10^{-19}$
1	270	$7.3 \cdot 10^{21}$	1.55	1.2 - 1.3	2.4
2	250	$6.76 \cdot 10^{21}$	2.17	1.2 - 1.3	4.4
3	550	$1.49 \cdot 10^{22}$	2.59	1.2 - 1.3	4.74

Камеры ХеНРС откачивались до вакуума 10^{-4} Па, с их однократной промывкой ксеноном с баллонным давлением ~30 бар. Затем камеры ХеНРС заполнялись ксеноном путем его ожижения при температуре $T_{\kappa u \pi} = -108^{\circ}$ С. Далее, камеры отогревались до комнатной температуры. Давление ксенона после заполнения им ХеНРС контролировалось с помощью стандартного манометра перед началом облучения в течение нескольких суток. Отметим, что при полном заполнении всего внутреннего объема ХеНРС жидким ксеноном максимальное давление, которое может быть получено составляет Р ≈ 597 бар при атомной плотности $n_{Xe}^{**u \pi} = 1,614 \cdot 10^{22}$ ат/см³.

В табл. 4 представлены параметры облучений [27], [28], [29], [30], [31]. В экспериментах осуществлялось интегрирование тока электронного пучка (\sum I, Табл.4). После окончания облучений часть газа из XeHPC перепускалась в откачанный до давления 10⁻⁴ Па газовый баллон с целью проведения последующего массового анализа для выяснения наличия или отсутствия вновь образовавшихся простых и молекулярных газов. В пределах чувствительности газового анализатора QMA-200 можно сделать вывод, что в процессе облучения новых газов в XeHPC не образуется. В пределах ошибки измерений на QMA-200 изотопный состав ксенона до и после облучения не отличался от табличных значений.

После этого камера XeHPC вскрывалась и сборка из пенала и внутренних вкладышей (4+5+6, рис. 13) помещалась на HP германиевый гамма детектор (Canberra) с разрешением 1,5 кэВ на линии ⁶⁰Co 1332,5 кэВ для измерения в течение 15 часов γ -спектров радиоактивных изотопов, образовавшихся в результате облучения. Фон детектора измерялся в течение 15 часов.

В результате гамма измерений зарегистрирован изотоп урана ^{237}U (T1/2=6,75 d) являющийся продуктом реакции $^{238}U(\gamma,n)$. Также зарегистрированы изотопы – осколки от деления урана, такие, как: $^{92,93}Y$, ^{95}Zr , $^{95,97}Nb$, ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{132}Te , $^{131-133}I$, ^{140}Ba , ^{140}La , $^{141,143}Ce$. Уран содержится в материале пеналов и вкладышей в качестве примесей на уровне $\sim 10^{-5-6}$ гр/гр. Отметим, что в гамма спектре были обнаружены линии изотопов ^{190}Ir и ^{192}Ir [27], которые получаются в реакции $^{191,193}Ir$ (γ ,n).

После измерения γ -спектров сборка из пенала и внутренних вкладышей разбиралась. Во всех экспериментах наблюдалось, что внешние поверхности пеналов из Д16Т (2, рис.14) и внутренние поверхности втулок и сборников из алюминия (5,6, рис.14) (передние в большей степени, а задние в меньшей степени) покрыты зелено-желтым налетом.

В эксперименте №1 (табл. 4), из внутренней камеры высыпались ~ 30 темных частиц размером до 1мм. В двух других экспериментах в процессе электронной микроскопии микрочастицы обнаруживались на внутренних стенках вкладышей и втулок.

Принимая во внимания всю совокупность данных, полученных методом P3MA, для всех экспериментов можно утверждать, что не наблюдается существенного различия в распределениях элементов как для передней и задней втулок, так и для переднего и заднего сборников [31].

На рис. 15 для эксперимента №2 (P=250 бар) представлены усредненные концентрации химических элементов, сделанные в "точках", по 97 измерениям [29].

На рис. 16 представлено сравнение усредненных концентраций элементов, зарегистрированных в разных экспериментах с давлением ксенона 250, 270 и 550 бар. Из рис. 16 видно, что, несмотря на имеющиеся различия в наборах химических элементов от эксперимента к эксперименту, характерные особенности в распределениях элементов по заряду ядра Z сохраняются. Всегда имеется группа легких элементов до Z=30, есть представители из группы средних элементов с Z от 30 до 70 и есть представители из группы тяжелых элементов с Z более 70.

Таким образом, методом РМЗА на поверхностях, имевших контакт с ксеноном, в микрочастицах и



Рис. 15. Элементный состав, усредненный по 97 измерениям, в эксперименте Xe $\mathrm{P{=}250}.$



Рис. 16. Сравнение концентраций элементов для разных давлений ксенона.

микроструктурах, зарегистрированы следующие, ранее отсутствовавшие химические элементы:

Эксперимент $N_{\rm P}1$, P=270 бар.

лёгкие элементы: ${}_{9}F$, ${}_{11}Na$, ${}_{15}P$, ${}_{16}S$, ${}_{17}Cl$, ${}_{19}K$, ${}_{20}Ca$, ${}_{22}Ti$, ${}_{23}V$, ${}_{24}Cr$, ${}_{25}Mn$, ${}_{26}Fe$, ${}_{27}Co$, ${}_{28}Ni$, ${}_{29}Cu$, ${}_{30}Zn$;

элементы средних масс: ${}_{32}Ge$, ${}_{38}Sr$, ${}_{41}Nb$, ${}_{42}Mo$, ${}_{47}Ag$, ${}_{48}Cd$, ${}_{51}Sb$, ${}_{56}Ba$;

тяжелые элементы: $_{73}Ta$, $_{74}W$, $_{79}Au$, $_{81}Tl$, $_{82}Pb$. Эксперимент №2, P = 250 бар.

лёгкие элементы: ${}_9F$, ${}_{11}Na$, ${}_{15}P$, ${}_{16}S$, ${}_{17}Cl$, ${}_{19}K$, ${}_{20}Ca$, ${}_{22}Ti$, ${}_{24}Cr$, ${}_{25}Mn$, ${}_{26}Fe$, ${}_{27}Co$, ${}_{28}Ni$, ${}_{29}Cu$, ${}_{30}Zn$;

элементы средних масс: ${}_{35}Br$, ${}_{38}Sr$, ${}_{47}Ag$, ${}_{49}In$, ${}_{50}Sn$, ${}_{51}Sb$, ${}_{60}Nd$, ${}_{70}Yb$;

тяжелые элементы: $_{72}Hf$, $_{73}Ta$, $_{74}W$, $_{82}Pb$, $_{83}Bi$, $_{87}Fr$, $_{89}Ac$.

Эксперимент №3, Р = 550 бар.

лёгкие элементы: ${}_9F$, ${}_{11}Na$, ${}_{15}P$, ${}_{16}S$, ${}_{17}Cl$, ${}_{19}K$, ${}_{20}Ca$, ${}_{21}Sc$, ${}_{22}Ti$, ${}_{23}V$, ${}_{24}Cr$, ${}_{25}Mn$, ${}_{26}Fe$, ${}_{27}Co$, ${}_{28}Ni$, ${}_{29}Cu$, ${}_{30}Zn$;



Рис. 17. Концентрации химических элементов, усредненные по 228 "точкам" и 61 "площади" всех экспериментов с Xe.

элементы средних масс: ${}_{32}Ge$, ${}_{40}As$, ${}_{38}Sr$, ${}_{39}Y$, ${}_{43}Tc$, ${}_{47}Ag$, ${}_{48}Cd$, ${}_{50}Sn$, ${}_{53}I$, ${}_{57}La$, ${}_{58}Ce$, ${}_{59}Pr$, ${}_{60}Nd$;

тяжелые элементы: $_{72}Hf,\,_{73}Ta,\,_{74}W,\,_{81}Tl,\,_{82}Pb,\,_{83}Bi$ и $_{89}Ac.$

Особый интерес вызывает факт обнаружения радиоактивных элементов: технеция 43Tc [30], франция 87Fr [29] и актиния ₈₉Ac [29], [30]. Изотоп технеция ⁹⁹Tc $(T_{1/2}=2.10^5$ лет) может появиться в результате бета распада молибдена ^{99}Mo ($T_{1/2}=66$ ч.), который получается в реакции ${}^{100}Mo(\gamma, n)$. Линии молибдена ${}^{99}Mo$ обнаружены в гамма спектре [27]. К моменту проведения РМЗА измерений молибден ⁹⁹Мо полностью распался в технеций ^{99}Tc . Порог реакции $^{100}Mo(\gamma,n)$ равен 8,3 МэВ, сечение $\sigma \sim 15$ мбарн. Содержание изотопа ¹⁰⁰ Moв естественной смеси составляет 9,6%. Стабильный молибден зарегистрирован в эксперименте №2 в РМЗА исследованиях. Однако, молибден не обнаружен в тех же РМЗА измерениях, в той же "точке", что и технеций, хотя должен присутствовать в "точке" в заметных для РМЗА количествах. Последнее обстоятельство приводит к заключению, что технеций может нарабатываться как первичный продукт в реакции ксенона с тормозными ү-квантами.

Сложнее объяснить появление пары францийактиний. Из особенностей распадов этих элементов, периодов их полураспада и времени проведения РМ-ЗА измерений мы припли к выводу, что мы наблюдаем пару изотопов ${}^{225}_{89}Ac \rightarrow {}^{221}_{87}Fr$ ($T_{1/2}(Ac)=10d$, $T_{1/2}(Fr)=5m$). Поскольку эти изотопы принадлежат нептуниевому ряду и в РМЗА измерениях не обнаружены ни радий ${}^{225}Ra$, ни торий ${}^{229}Th$, то можно сделать вывод: изотоп ${}^{225}Ac$ синтезируется непосредственно в реакции конденсированного ксенона с тормозными γ -квантами.

По совокупности данных трех экспериментов можно утверждать, что в результате длительного облучения тормозными гамма квантами конденсированного ксенона в нем синтезируются "практически все элементы" таблицы Менделеева. На рис. 17 представлены концентрации химических элементов, усредненные по трём экспериментам P=250, 270, 550 бар. В этом распределении использовались результаты измерений, проведенные в 228 "точках" и 61 "площади".

VII. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

При сравнении рисунков 7, 8, 13, 17 становится очевидным, что во всех распределениях постоянно присутствует группа лёгких элементов с Z \leq 30, от углерода до цинка. Кроме того с увеличением заряда-массы облучаемого газа, возрастает количество синтезированных элементов с Z> 30.

Тривиальным объяснением появления всех зарегистрированных в экспериментах "посторонних" химических элементов является неконтролируемый их занос во внутренний объём реакционных камер в процессе вакуумной откачки и последующего заполнения камер конденсированными газами. Для проверки этого предположения были поведены специальные, "фоновые" эксперименты: А - После одной из процедур заполнения дейтерием DHPC, камера была вскрыта без облучения; В - В следующем опыте образец Pd выдерживался в DHPC в течение 10⁵ с без облучения при давлении дейтерия ~20 кбар; С - После процедуры заполнения ксеноном камеры ХеНРС она была вскрыта без облучения; D - Было проведено отдельное облучение, при энергии электронов 10 МэВ, пустой камеры ХеНРС со всеми внутренними втулками и сборниками. Камера между облучениями постоянно откачивалась до давления 10^{-4} Па. Время облучения составило $2 \cdot 10^5$ с, при среднем токе электронного пучка 1,2.10¹⁴ с⁻¹ с набранным интегралом тока, как в эксперименте №1; Е - В другом эксперименте камера, заполненная дейтерием с давлением 60 бар с палладиевым цилиндром размером Ø0,5x0,8 см³ внутри, облучалась в течение $1,3{\cdot}10^5$ с, при среднем токе электронного пучка $1,1{\cdot}10^{14}$ с⁻¹. Палладий был чистотой 99,997%. Этот эксперимент был нацелен на синтез химических элементов при пониженном давлении дейтерия, по сравнению с другими экспериментами, в которых давление дейтерия составляло 1,2 и 3 кбар [32], [33]. Во всех случаях сделанные РЭМ и РМЗА исследования внутренних втулок, сборников и поверхности палладиевого цилиндра показали отсутствие в них каких-либо новых синтезированных структур и измененного элементного состава. Следовательно, появление "посторонних" элементов во внутреннем объёме реакционных камер, с высокой степенью вероятности, определяется взаимодействием гамма излучения с конденсированными газами и с атомами металлов, окружающих газ. Взаимодействие гамма квантов с энергией до 10 МэВ с веществом характеризуется: фотоэффектом, эффектом Комптона и рождением электрон-позитронных пар. Все три эффекта приводят к образованию электронов и позитронов с энергиями <10 МэВ, которые ионизуют атомы газа и атомы материалов, окружающих газ. Таким образом,

в облучаемом объёме создается плотная плазма с высокой температурой электронов. Следовательно, возникновение "посторонних" элементов в камере определяется созданием в её объёме неравновесной, горячей, плотной плазмы.

Имеется две нетривиальные возможности появления химических элементов. Одна из них связана с гипотезой о "плазменной диффузии" уже имеющихся, примесных элементов из глубины окружающих газ материалов к поверхности раздела двух сред: твердотельной и газовой. При этом плотность атомов в газе должна быть сравнима с плотность тведого тела. Вторая возможность связана с гипотезой о возникновении в плотной плазме условий для слияния нескольких атомных ядер в общий компаунд с последующим его распадом на другие ядра-фрагменты.

Действительно, относительные концентрации химических элементов в дюрале алюминия Д16Т составляют: Al ~90%, Cr~4%, Mg~1,5%. Mn~0,5%, F<0,5%, Si<0,5%, Zn<0,5%, Ti<0,1%, Ni<0,1%; в нержавеющей стали 12X18P10T: Cr~18%, Fe~ 72%, Ni~10%. В состав нержавеющих сталей могут входить элементы: С, В, Al, Ti, V, Mn, Cu, Nb, Mo, W. Строго говоря, во всех сплавах металлов можно найти следовые количества практически всех элементов, в том числе и радиоактивных. Поэтому, если бы существовал механизм "плазменной диффузии" примесных химических элементов из глубины материалов на их поверность, тогда им можно было бы попытаться объяснить появление "посторонних" элементов. Но такой механизм неизвестен, так же, как неизвестен механизм синтеза новых элементов в результате общеизвестных, ядерных взаимодействий гамма квантов с ядрами атомов газов, находящихся в конденсированном состоянии.

Очевидно, требуется постановка новых экспериментов, способных подтвердить или опровергнуть полученные результаты и гипотезы.

Список литературы

- Didyk A.Yu., Wiśniewski R. Nuclear reactions, induced by gamma quanta, in palladium saturated with deuterium surrounded by dense deuterium gas. *Euro. Phys. Lett.*, 99:P.22001–P1–22001–P6, 2012.
- [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. *Phys. Part. Nucl. Lett.*, 9:615–631, 2012.
- [3] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Синтез новых структур в плотном газообразном дейтерии и насыщенном дейтерием палладии при ядерных реакциях, инициированных γквантами. Физика и химия обработки материалов, (5):5– 13, 2012. Препринт ОИЯИ P15-2012-50. Дубна, 2012. 16 с.
- [4] Didyk A.Yu., Wiśniewski R., Wilczynska-Kitowska T., and Shilov V.M. Changes in the Chemical Composition of Nuclear Reaction Products Irradiated with 10 MeV γ-Quanta in Deuterium Saturated Palladium. J. Surface Investigation. X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques, 8(6):1100–1112, 2014.
- [5] Didyk A.Yu., Wiśniewski R. Nuclear reactions in deuteriumsaturated palladium under irradiation by 10 MeV γ-quanta in dense molecular deuterium at 1,2 kbar pressure. *Euro. Phys. Lett.*, 103:P.42002–P1–42002–P6, 2013.

- [6] Белов А.Г. Микротрон МТ-25, Рабочее совещание по использованию микротронов в ядерной физики. Пловдив. 22-24 сентября 1992. Д15-93-80, с.12-19. Дубна, 1993.
- [7] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Ядерные реакции в насыщенном дейтерием палладии и рении в атмосфере плотного дейтерия при облучении γ-квантами непрерывного спектра с граничной энергией 23 МэВ. Писъма в ЭЧАЯ, (5):5–13, 2012.
- [8] Didyk A.Yu., Wiśniewski R. The Study of Changes in the Element Compositions of Pd and Re Specimens Irradiated in Dense Gaseous Deuterium by γ-Quanta with Boundary Energy up to 23 MeV. Journal of Physical Science and Application, (3 (4)):209-217, 2013.
- [9] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Изменения поверхности, объемных свойств образцов ванадия и нержавеющей стали, облученных в плотном газообразном дейтерии γ-квантами с пороговой энергией 23МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2012-75. Дубна, 2012. 15 с.
- [10] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Результаты по облучению алюминия и гомогенного сплава YMn2 *γ*-квантами с энергией 23 МэВ в атмосфере молекулярного дейтерия при давлении 2 кбар. Писъма в ЭЧАЯ, 11(3(187)):284–298, 2014.
- [11] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Результаты по облучению нержавеющей стали и меди у-квантами с энергией 23 МэВ в атмосфере молекулярного дейтерия при давлении 2 кбар. *Phys. Part. Nucl. Lett.*, (3):309–328, 2014.
- [12] Didyk A.Yu., Wiśniewski R. Structure and Chemical Composition Changes of Pd Rod and Reaction Product Collector Irradiated by 10 MeV Braking Gamma Quanta inside High Pressure Chamber Filled with 2.5 kbar Molecular Hydrogen. *Phys. Part. Nucl. Lett.*, 11(4):513–527, 2014. Препринт ОИЯИ P15-2013-80. Дубна, 2013. 32 с.
- [13] Didyk A.Yu. and Wiśniewski R. Synthesis of New Structures on the Surface of Pd Rod and HHPC Elements and Their Chemical Composition in Nuclear Reactions Induced by Bremstrahlung γ Quanta with Threshold Energy of 10 MeV in Molecular Hydrogen at a Pressure of 0.5 kbar. *Phys. Part. Nucl. Lett.*, 12(4):603–617, 2015. Препринт ОИЯИ P15-2014-6. Дубна, 2014. 34 с.
- [14] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Химический состав и структура синтезированных частиц на поверхности ННРС при ядерных реакциях при облучении тормозными *γ*-квантами с пороговой энергией 10 МэВ в молекулярном водороде при давлении 0,5 кбар. Препринт ОИЯИ Р15-2014-7. Дубна, 2014. 24 стр.
- [15] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Ядерные реакции с синтезом микрочастиц в водороде при давлении 3,5 кбар в присутствии олова при облучении тормозными у-квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-89, Дубна, 2014, 26 с.
- [16] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Ядерные реакции с синтезом микрочастиц в ННРС при давлении 3,5 кбар водорода с цилиндром из олова под действием облучения тормозными *γ*-квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ P15-2014-88, Дубна, 2014, 43 с.
- [17] Дидык А.Ю., Вишневский Р., Вилчиньска-Китовска Т., Исхакова Л.Д. Синтез микрочастиц в плотном водороде при давлении 3,5 кбар с оловянным стержнем под действием тормозных γ-квантов с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ P15-2014-104. Дубна, 2014, 23 с.
- [18] Дидык А.Ю., Вишневский Р., Семин В.А. Синтез микрочастиц в гелии при давлении 2,4 кбар с палладием при облучении тормозными γ-квантами с максимальной энергией 10 МэВ (часть 1). Препринт ОИЯИ Р15-2015-33. Дубна, 2015. 40 с.
- [19] Дидык А.Ю., Вишневский Р., Семин В.А. Исследование процессов образования новых структур и элементов в гелии при давлении 2,4 кбар с палладием при воздействии тормозных *γ*-квантов с максимальной энергией 10 МэВ (часть 2). Препринт ОИЯИ Р15-2015-34. Дубна, 2015. 40 с.
- [20] Didyk A.Yu. and Wiśniewski R. Synthesis of Microobjects in 1 kbar Hydrogen Induced by 10 MeV Bremsstrahlung γ Quanta on Inner Surfaces of Components of a High Pressure Chamber (Part 1). Physics of Particles and Nuclei Letters, 12(1):125–144, 2015.
- [21] Didyk A.Yu. and Wiśniewski R. Synthesis of Microobjects in 1 kbar Hydrogen Induced by 10 MeV Bremsstrahlung γ Quanta

on Inner Surfaces of Components of a High Pressure Chamber (Part 2). *Physics of Particles and Nuclei Letters*, 12(1):145–165, 2015.

- [22] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Синтез новых структур, образованных в результате ядерных реакциях в ННРС с давлением водорода 3,4 кбар при облучении тормозными γ-квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2015-79. Дубна, 2014. 27 с.
- [23] Didyk A.Yu., Wiśniewski R. and Wilczynska-Kitowska T. The carbon-based structures synthesized through nuclear reactions in helium at 1.1 kbar pressure under irradiation with braking γ-rays of 10 MeV threshold energy. *Euro. Phys. Lett.*, 109:P.22001–P.1–22001–P.6, 2015.
- [24] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Свойства структур на основе углерода, синтезированных в ядерных реакциях в гелии при давлении 1,1 кбар под действием облучении тормозными уквантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ P15-2014-38. Дубна, 2014. 40 стр.
- [25] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Ядерные реакции, синтез химических элементов и новых структур в плотном гелии при давлении 1,1 кбар под действием облучении тормозными γквантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ P15-2014-50. Дубна, 2014. 40 стр.
- [26] Дидык А.Ю., Вишневский Р. Синтез новых структур и образование химических элементов в плотном гелии при давлении 3,05 кбар при облучении тормозными γ-квантами с пороговой энергией 10МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-87. Дубна, 2014. 23 с.
- [27] Дидык А.Ю., Гульбекян Г.Г., Мышинский Г.В. РЭМ- и РМЗА-исследования синтезированных частиц и объектов при облучении плотного ксенона (270 атм) тормозными *γ*-квантами с максимальной энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2015-71. Дубна, 2015. 40 с.
- [28] Дидык А.Ю., Гульбекян Г.Г., Мышинский Г.В. Исследование изменений элементного состава и структуры поверхностей при облучении плотного ксенона (270 атм) тормозными *γ*-квантами с максимальной энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ P15-2015-72. Дубна, 2015. 32 с.
- [29] Дидык А,Ю., Гульбекян Г.Г., Г.В. Мышинский Г.В. Аномалии на внутренних поверхностях камеры высокого давления ксенона XeHPC (250 бар) с образованием микрочастиц сложного состава при облучении тормозным излучением с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2016-1. Дубна, 2016. 38 с.
- [30] Дидык А.Ю., Гульбекян Г.Г., Мышинский Г.В., Сабельников А.В. Синтез микрочастиц сложного состава в камере высокого давления ксенона (550 бар) при облучении тормозным излучением с максимальной энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2016-19. Дубна, 49 с.
- [31] Didyk A.Yu., Gulbekian G.G., Mishynski G.V., Wiśniewski R. A study of Changes of the Element Composition and Structure of Surfaces under Irradiation of Dense Xenon Gas (270 bar) by γ-Rays with Maximum Energy of 10 MeV. JPSA, 2016, 6(2)18-28.
- [32] Дидык А.Ю. Ядерные реакции синтеза и деления химических элементов и образование новых структур в плотных газах H2, D2 и Не при облучении 10 МэВ-ными у-квантами. Физики и химия обработки материалов, (2):5–19, 2015.
- [33] Wiśniewski R., Didyk A.Yu. Synthesis of New Structures and Substances in Dense Gases H2, D2 and He under Irradiation by Braking 10MeV γ-rays in CuBe2 Pressure Chamber. 2016, JPSA, 6(4) 13-21.
- [34] Didyk A.Yu., Wiśniewski R. Properties of hydrogen and its isotopes under high pressure, and technological applications. JINR, Dubna, 2013. 320 p.