

P15-2015-78

А. Ю. Дидык, П. Конарски<sup>1</sup>, А. В. Сабельников,  
Р. Вишневски<sup>2</sup>

ОБРАЗОВАНИЕ  ${}_{91}^{231}\text{Pa}$  И  ${}_{96}^{246}\text{Cm}$   
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПАЛЛАДИЕВОГО СТЕРЖНЯ  
В ДНРС, ЗАПОЛНЕННОЙ МОЛЕКУЛЯРНЫМ  
ДЕЙТЕРИЕМ ПРИ ДАВЛЕНИИ 1,2 кбар,  
ТОРМОЗНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ  
С МАКСИМАЛЬНОЙ ЭНЕРГИЕЙ 10 МэВ

Направлено в журнал «Письма в ЭЧАЯ»

---

<sup>1</sup> Теле- и радиотехнический институт, Варшава

<sup>2</sup> Варшавский политехнический университет, Варшава

Дидык А. Ю. и др.

P15-2015-78

Образование  $^{231}_{91}\text{Pa}$  и  $^{246}_{96}\text{Cm}$  при облучении палладиевого стержня в ДНРС, заполненной молекулярным дейтерием при давлении 1,2 кбар, тормозным излучением с максимальной энергией 10 МэВ

Образец палладия был облучен тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ в атмосфере молекулярного дейтерия при давлении 1,2 кбар в течение 18 ч при токе электронного пучка 11–13 мкА в камере высокого давления дейтерия (ДНРС). При изучении всех внутренних поверхностей ДНРС было обнаружено значительное количество свинца. В результате проведенных детальных исследований элементного состава продуктов ядерных реакций методами рентгеновского микрозондового анализа (РМЗА), масс-изотопного анализа (ВИМС), измерения энергетического спектра и числа испускаемых  $\alpha$ -частиц на  $\alpha$ -спектрометре («Canberra»), а также регистрации  $\alpha$ -частиц трековым детектором (CR-39) установлено, что при облучении ДНРС тормозным излучением в результате ядерных реакций образовались тяжелые элементы  $^{231}_{91}\text{Pa}$  и  $^{246}_{96}\text{Cm}$ , которые являются искусственными и отсутствуют в природе. Обсуждаются возможные механизмы их образования на основе результатов ранее проведенных исследований и феноменологического подхода к возможным ядерным реакциям.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2015

Didyk A. Yu. et al.

P15-2015-78

$^{231}_{91}\text{Pa}$  and  $^{246}_{96}\text{Cm}$  Production under Irradiation of Palladium Rod in the Molecular Deuterium at a Pressure of 1.2 kbar by Braking Radiation with a 10 MeV Maximum Energy

The sample of palladium was irradiated by braking  $\gamma$ -rays with 10 MeV threshold energy in an atmosphere of molecular deuterium at a pressure of 1.2 kbar during 18 h at a current of 11–13  $\mu\text{A}$  with electron beam in the deuterium high-pressure chamber (DHPC). The study of the inner surfaces of DHPC showed significant amounts of lead. As a result of detailed research of elemental composition of the products of nuclear reactions by X-ray micro-probe analysis (RMPA), isotopic mass analysis (SIMS), the measurement of the energy spectrum and the number of  $\alpha$ -particles emitted in the  $\alpha$ -spectrometer (Canberra), as well as the registration of  $\alpha$ -particles by track detector (CR-39), it was found that under irradiation of DHPC by bremsstrahlung the nuclear reactions formed heavy elements  $^{231}_{91}\text{Pa}$  and  $^{246}_{96}\text{Cm}$  which are artificial and lacking in nature. Possible mechanisms of their formation are discussed on the basis of the results of earlier studies and phenomenological approach to possible nuclear reactions.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2015

## ВВЕДЕНИЕ

В работах [1–4] представлены результаты изучения структуры новых синтезированных микрообъектов на внутренних поверхностях камеры высокого давления (ДНРС), заполненной молекулярным дейтерием при давлении 1,2 кбар, с палладиевым стержнем, которая была облучена тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ в течение 18 ч при токе электронного пучка 11–13 мкА. Схема ДНРС представлена на рис. 1.

Отметим, что во всех экспериментах образцы палладия в виде стержней имели высокую степень чистоты. В частности, измеренные максимальные концентрации обнаруженных примесей приведены в табл. 1 в ppm.

Концентрации обнаруженных примесей в образцах палладия по восьми измерениям суммарных количеств примесей, приведенных в паспорте, составили: первая серия измерений — 77, 69, 90, 56, 51 ppm и вторая серия измерений — 12, 16 и 24 ppm.

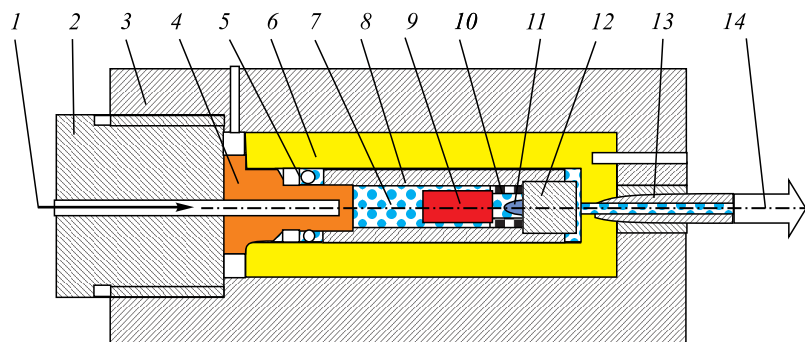


Рис. 1. Схематическое изображение ДНРС и ННРС: 1 — поток  $\gamma$ -квантов; 2 — резьбовое соединение с входным отверстием; 3 — корпус камеры высокого давления; 4 — входное окно из  $\text{Cu}_{98-96}\text{Be}_{2-4}$ ; 5 — уплотнение для высокого давления; 6 — цилиндр камеры высокого давления из  $\text{Cu}_{98-96}\text{Be}_{2-4}$ ; 7 — дейтерий (ДНРС) или водород (ННРС); 8 — реакционная камера из латуни; 9 — Pd-стержень длиной 4 мм и диаметром 3,8 мм; 10 — разделительная фольга; 11 — синтезированный продукт реакции; 12 — латунный сборник; 13 — капилляр высокого давления; 14 — клапан и тензор-датчик давления

**Таблица 1. Максимальные концентрации обнаруженных примесей в палладии в ppm**

Элемент	Измерение 1	Измерение 2	Элемент	Измерение 1	Измерение 2
47Ag	< 3	< 3	77Ir	< 10	< 10
13Al	< 10	< 15	12Mg	< 3	4
33As	< 10	< 10	25Mn	< 5	< 5
79Au	41	48	28Ni	< 5	< 5
56Ba	—	—	82Pb	< 5	< 5
4Be	—	—	46Pd	99,9923 %	99,9910 %
83Bi	< 5	< 5	78Pt	< 10	< 10
20Ca	< 3	< 3	45Rh	< 10	< 10
48Cd	—	—	44Ru	< 10	< 10
24Cr	—	—	51Sb	< 10	< 10
29Cu	12	10	14Si	< 10	< 10
26Fe	14	19	60Sn	< 10	< 10
31Ga	—	—	30Zn	< 3	< 3
49In	—	—	Сумма	77	90

Давление молекулярного дейтерия в ДНРС при облучении  $\gamma$ -квантами составляло  $P_{D_2} \cong 1,2$  кбар, что соответствует расчетному значению концентрации молекулярного газообразного дейтерия  $N_{D_2} \cong 1,476 \cdot 10^{22}$  молекул  $D_2/cm^3$  при его плотности  $\rho_{D_2} \cong 0,088$  г/см<sup>3</sup> [1–4, 7]. Исходная масса Pd-стержня составляла  $M_{Pd}^0 = 0,7509$  г. После облучения  $\gamma$ -квантами масса Pd-стержня оказалась  $M_{Pd}^{ir} = 0,71845$  г. Следовательно, абсолютное изменение массы Pd-стержня  $\Delta M_{Pd} = M_{Pd}^0 - M_{Pd}^{ir} = 0,03245$  г (относительное изменение массы составляет 4,3 %). Как показали растровая электронная микроскопия (РЭМ) и рентгеновский микрозондовый анализ (РМЗА) [1–4], практически все внутренние поверхности элементов, входящих в ДНРС, а именно: входного окна (рис. 1, поз. 4) с присутствующей на нем внешней резьбой вплоть до уплотнения для высокого давления (рис. 1, поз. 5), внутренних стенок латунной втулки (рис. 1, поз. 8) с внутренней резьбой с обеих ее сторон, Pd-стержня (рис. 1, поз. 9), латунного сборника (рис. 1, поз. 12) с внешней резьбой на нем, покрыты частицами свинца различных размеров. 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 ( $_{6}C$ ,  $_{8}O \downarrow \uparrow$ ,  $Ne \uparrow$ ,  $_{11}Na$ ,  $_{12}Mg$ ,  $_{13}Al$ ,  $_{14}Si$ ,  $_{15}P$ ,  $_{16}S$ ,  $_{17}Cl$ ,  $_{18}Ar \uparrow$ ) (см. [1]). По оценкам, сделанным в [1–4] и подтвержденным экспериментальными измерениями с помощью РМЗА в данной работе, общее количество свинца ( $N_{Pb}$ ) может достигать практически микроскопических количеств, а именно:  $N_{Pb} < 9,42 \cdot 10^{19}$  атомов Pb.

В работах [5, 6] палладиевый образец длиной 4 мм и диаметром 3,8 мм в ННРС (камере высокого давления водорода) был облучен в атмосфере плотного водорода при давлении 0,5 кбар. На рис. 2 приведены РЭМ-изображения

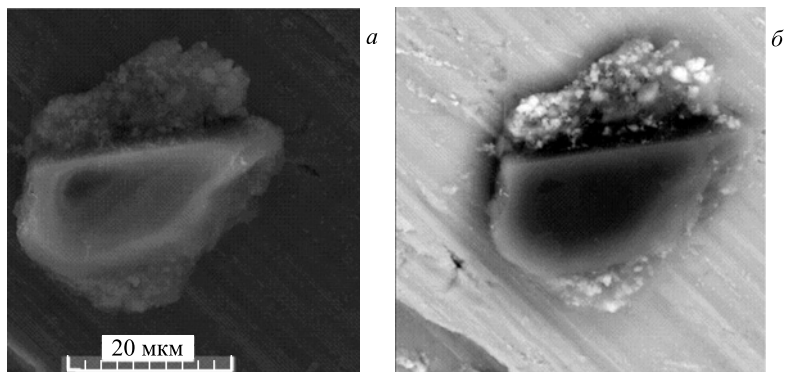


Рис. 2. РЭМ-изображения структуры в виде плотной частицы и более мелких вкраплений во вторичных (а) и в отраженных (б) электронах

структуры в виде плотной частицы и более мелких вкраплений (светлых частиц) во вторичных (а) и в отраженных (б) электронах. В отраженных электронах (рис. 2, б) светлые частицы имеют больший порядковый номер элементов, чем темные. Поэтому светлые частицы, находящиеся сверху и снизу плотной частицы, должны иметь порядковый номер элемента больше, чем частицы на подложке из меди и цинка. Сверху и снизу плотной однородной частицы присутствуют рыхлые мелкодисперсные образования с большими атомными номерами, чем в самой частице.

На рис. 3, а представлено РЭМ-изображение структуры на поверхности латунной реакционной камеры; вдоль выделенной полосы проведено измерение методом РМЗА; соответствующие распределения элементов приведены на рис. 3, б [5, 6].

Из распределений на рис. 3, б сделан вывод о том, что плотная центральная частица состоит из кремния (до 800 отн. ед.), кислорода (до 400 отн. ед.) и магния (до 60 отн. ед.), а светлые мелкие частицы сверху и снизу от центральной частицы — из бария (до 400 отн. ед.), свинца (до 40 отн. ед.), железа (до 120 отн. ед.), титана (до 300 отн. ед.), серы (до 300 отн. ед.), углерода (до 90 отн. ед.) и фосфора (до 40 отн. ед.).

На рис. 4 представлен суммарный характеристический спектр рентгеновского излучения (ХСРИ), соответствующий элементному составу при сканировании РМЗА по полосе на рис. 3, а. Из ХСРИ видно, что присутствуют линии, соответствующие протактинию, при этом часть линий протактиния совпадает с линиями от свинца. В табл. 2 приведены концентрации элементов, соответствующих ХСРИ на рис. 4.

Из табл. 2 видно, что структура содержит значительные количества алюминия (6,21 ат. %), кремния (6,03 ат. %), калия (1,55 вес. %), бария (2,21 вес. %) и свинца (0,48 вес. %). Наиболее удивительный элемент, ко-

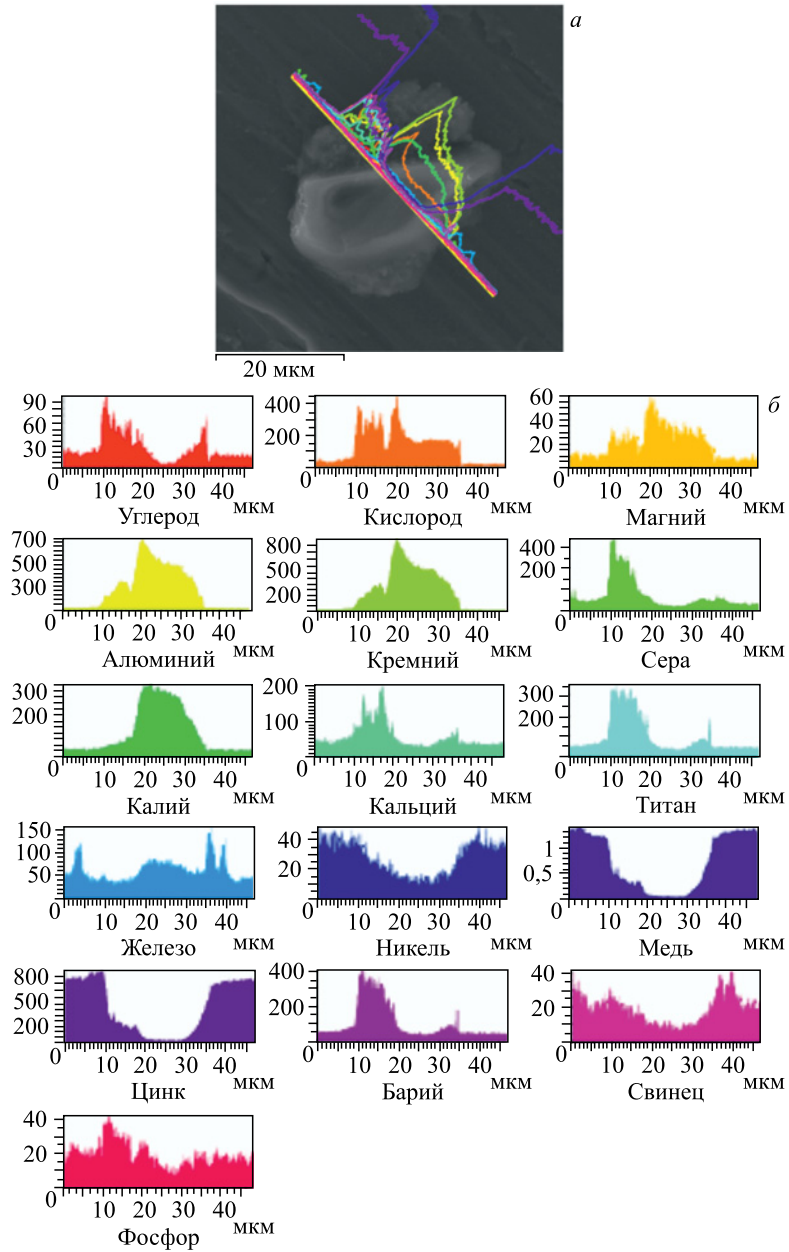


Рис. 3. РЭМ-изображение структуры на поверхности латунной реакционной камеры (а), вдоль выделенной полосы проведено измерение методом РМЭА; соответствующие распределения элементов (б)

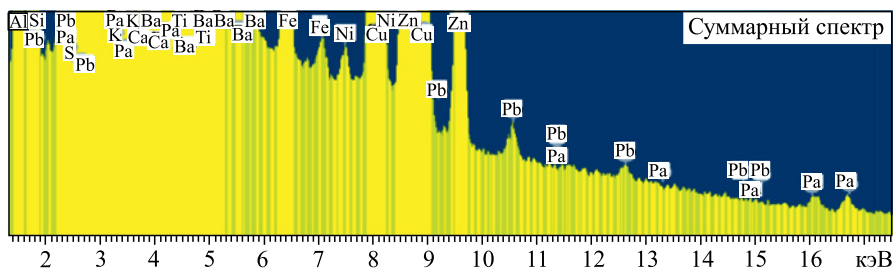


Рис. 4. Суммарный ХСРИ, соответствующий сканированию РМЗА по полосе на рис. 3, а

Таблица 2. Концентрации элементов структуры на рис. 2 и 3, а, соответствующие ХСРИ на рис. 4

Элемент	Серия	<i>C</i> , вес. %	<i>C</i> , ат. %
<b>Углерод</b>	<b>К</b>	<b>18,14</b>	<b>35,01</b>
<b>Кислород</b>	<b>К</b>	<b>25,69</b>	<b>37,22</b>
Магний	К	0,47	0,45
<b>Алюминий</b>	<b>К</b>	<b>7,23</b>	<b>6,21</b>
<b>Кремний</b>	<b>К</b>	<b>7,31</b>	<b>6,03</b>
Сера	К	0,79	0,57
Калий	К	1,55	0,92
Кальций	К	0,33	0,19
Титан	К	0,29	0,14
Железо	К	0,63	0,26
Никель	К	0,09	0,03
Медь	К	20,94	7,64
Цинк	К	13,80	4,89
<b>Барий</b>	<b>L</b>	<b>2,21</b>	<b>0,37</b>
Свинец	L	0,48	0,05
<b>Протактиний</b>	<b>M</b>	<b>0,05</b>	<b>0,00</b>

торый был обнаружен и рентгеновские линии которого отчетливо видны на ХСРИ, — это протактиний.

Цель настоящей работы: а) проведение измерений масс всех изотопов свинца (см. [1–4]), а также проверка наличия протактиния и, возможно, более тяжелых элементов на поверхностях латунной реакционной камеры и сборника продуктов ядерных и химических реакций (см. рис. 1, поз. 8 и 12) методом вторичной масс-ионной спектроскопии (ВИМС/SIMS); б) измерение эмиссии  $\alpha$ -частиц на  $\alpha$ -спектрометре «Санбегга» ЛЯР им. Г. Н. Флерова с поверхностей, покрытых свинцом, методами альфа-спектрометрии; в) регистрация  $\alpha$ -частиц трековыми полимерными детекторами CR-39.

## 1. ДЕТАЛЬНЫЙ РМЗА ПОВЕРХНОСТЕЙ ЛАТУННОЙ РЕАКЦИОННОЙ КАМЕРЫ И СБОРНИКА ПРОДУКТОВ ЯДЕРНЫХ И ХИМИЧЕСКИХ РЕАКЦИЙ (СМ. РИС. 1, ПОЗ. 8 И 12) [1–4]

Поверхности обеих половинок разрезанной реакционной камеры (рис. 1, поз. 8) были повторно изучены методами РЭМ и РМЗА в местах со значительным слоем мелкодисперсного свинца для поиска отметок от протактиния в ХСРИ.

На рис. 5, *a*, 6, *a* и 7, *a* представлены три различных структуры с высоким содержанием свинца, а на рис. 5, *b*, 6, *b* и 7, *b* приведены ХСРИ, выполненные в т. 9, 10 и 11; в табл. 3–5 даны соответствующие концентрации элементов.

Как видно из спектров на рис. 5, *b*, 6, *b* и 7, *b*, рентгеновские линии протактиния близки к линиям свинца, поэтому ввиду малости концентрации протактиния на фоне высокой концентрации свинца не удалось получить сколько-нибудь заметные его концентрации во всех трех таблицах (см. табл. 3–5).

Образование протактиния, бария и других элементов в ядерных реакциях носит вероятностный характер в объеме палладия и внутренних поверхно-

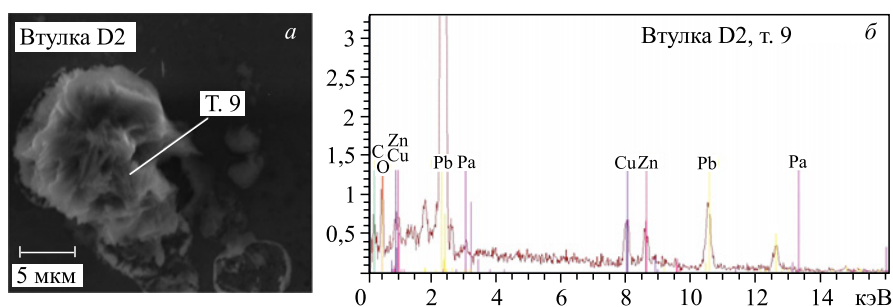


Рис. 5. РЭМ-изображение структуры на поверхности реакционной камеры (*a*) и ХСРИ в т. 9 (*b*)

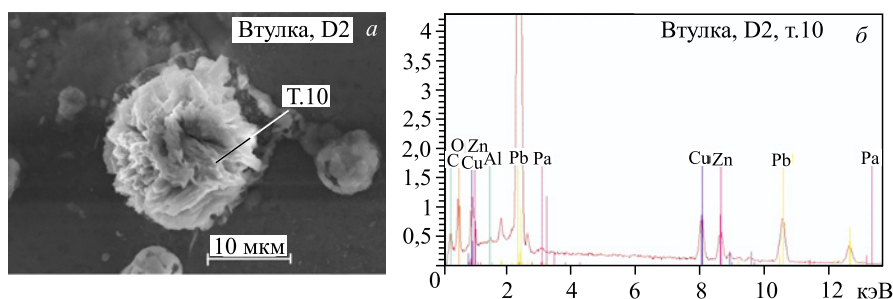


Рис. 6. РЭМ-изображение структуры на поверхности реакционной камеры (*a*) и ХСРИ в т. 10 (*b*)



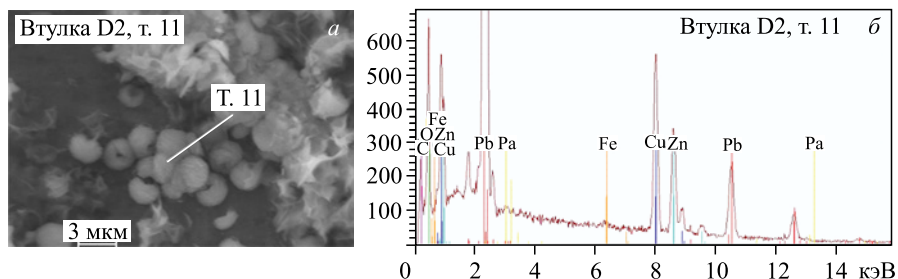


Рис. 7. РЭМ-изображение структуры на поверхности реакционной камеры (а) и ХСРИ в т. 11 (б)

Таблица 3. Концентрации элементов в т. 9, соответствующие ХСРИ на рис. 5, б

Элемент	Z	Серия	C, вес. %	C, ат. %
Углерод	6	K	8,94 ± 3,33	30,94
Кислород	8	K	18,74 ± 5,15	48,70
Медь	29	K	7,27 ± 0,38	4,76
Цинк	30	K	5,84 ± 0,34	3,71
Свинец	82	L	59,22 ± 2,32	11,89
Протактиний	91	L	0,0	0,0

Таблица 4. Концентрации элементов в т. 10, соответствующие ХСРИ на рис. 6, б

Элемент	Z	Серия	C, вес. %	C, ат. %
Углерод	6	K	8,82 ± 1,63	31,02
Кислород	8	K	17,93 ± 2,75	47,33
Алюминий	13	K	0,01 ± 0,03	0,02
Медь	29	K	8,39 ± 0,25	5,57
Цинк	30	K	6,46 ± 0,21	4,17
Свинец	82	L	58,39 ± 1,59	11,90
Протактиний	91	L	0,0	0,0

Таблица 5. Концентрации элементов в т. 11, соответствующие ХСРИ на рис. 7, б

Элемент	Z	Серия	C, вес. %	C, ат. %
Углерод	6	K	9,22 ± 2,04	29,09
Кислород	8	K	20,33 ± 3,47	48,17
Железо	26	K	0,30 ± 0,05	0,20
Медь	29	K	14,83 ± 0,45	8,85
Цинк	30	K	9,00 ± 0,30	5,22
Свинец	82	L	46,33 ± 1,44	8,48
Протактиний	91	L	0,0	0,0

стей ДНРС, т.е. реакции образования элементов происходят в местах, где достигаются необходимые условия их протекания, поэтому обнаружение тех или иных элементов также носит флуктуационный характер. Выполняемые исследования РЭМ и РМЗА проводятся точно или по малым площадям и на обнаруженных, т.е. не на всех, структурах. В частности, можно сказать, что при получении результатов в работе [6], которые представлены в табл. 2 и в ХСРИ на рис. 4, просто присутствовал элемент везения.

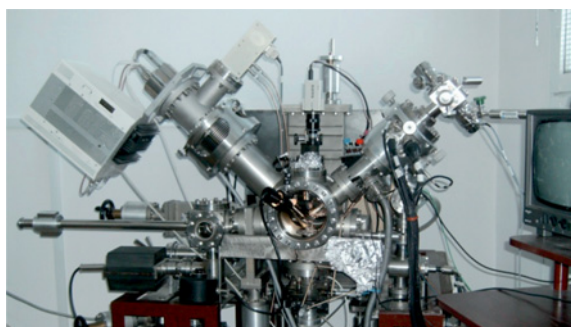
Тем не менее данные работы [6] и рис. 5–7 можно считать указанием на возможное присутствие в образовавшемся свинце в [1–4] атомов протактиния.

## 2. ВТОРИЧНАЯ МАСС-ИОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ (ВИМС/SIMS) СВИНЦА И ДРУГИХ, БОЛЕЕ ТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

Была сформулирована следующая задача: определить изотопный состав образовавшихся изотопов свинца, измерить их массы и концентрации. Для калибровки спектрометров вначале был использован гранулированный висмут  $^{209}_{83}\text{Bi}$  (100 %) с чистотой 97,5 % с известными концентрациями примесей, который имеет только один изотоп.

Как известно [8, 9, 24], природный свинец состоит из четырех изотопов:  $^{204}_{82}\text{Pb}$  (1,4 %),  $^{206}_{82}\text{Pb}$  (24,1 %),  $^{207}_{82}\text{Pb}$  (22,1 %) и  $^{208}_{82}\text{Pb}$  (52,4 %).  $^{231}_{91}\text{Pa}$  имеет период полураспада 32760 лет и  $^{246}_{96}\text{Cm}$  имеет период полураспада 4730 лет.

Измерения SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry) и GDMS (Glow Discharge Measurement Spectrometry) проводились с использованием изготовлен-



Масс-спектрометр SIMS (SAJW-05)



Масс-спектрометр GDMS (SMWJ-01)

Рис. 8. Прецизионные приборы SIMS (а) и GDMS (б)

ных на заказ двух прецизионных приборов, описанных в работах [10, 11]. На рис. 8 представлены изображения установок SIMS и GDMS.

Анализатор SIMS (SAJW-05) [8] оснащен квадрупольным масс-анализатором (QMA-410 Balzers) и ионной пушкой (Physical Electronics 06-350E) с ионами  $Ar^+$  с энергией 0,5–5 кэВ.

#### Параметры анализатора QMA-410:

крепежный шток из молибдена	диаметр 16 мм
диапазон масс	0–340 а. е. м.

#### Параметры ионной пушки Physical Electronics 06-350E:

энергия ионов	от 0,25 до 5 кэВ
максимальный ионный ток	до 5 мкА
диаметр пучка ионов	100 мкм (при 5 кэВ)
газы	Ar, Xe, O <sub>2</sub>
угол падения ионов	45°

#### Параметры SIMS (SAJW-05):

исходное растровое сканирование пучка	от 0,8 × 0,8 мм до 3 × 3 мм
разрешение по глубине профиля	0,6 нм (0,8 кэВ ионного пучка $Ar^+$ )
чувствительность	в области от ppm до ppb

Анализатор GDMS (SMWJ-01) оснащен квадрупольным масс-анализатором SRS-300.

#### Параметры прибора GDMS:

шток-система	6 мм в диаметре
диапазон масс	0–300 а. е. м.
источник питания	DC тлеющего разряда
рабочий газ	Ar при $1,5 \cdot 10^{-1}$ ГПа
напряжение	1,8 кВ DC
ток разряда	1,8 мА
промежуточный катод из тантала	диаметр диафрагмы 1,5 мм
чувствительность	от 0,1 % до 1 ppm

Исследуемые образцы были установлены на держателе образцов и после анализа SIMS показаны на рис. 9. Светлые пятна на образцах соответствуют местам, где был выполнен анализ. В нескольких пятнах (диаметром 0,5 мм) был проведен анализ на поверхности.

Давление в SIMS аналитической камере было  $1 \cdot 10^{-10}$  торр. Для анализа был использован пучок ионов  $Ar^+$  с энергией 3 кэВ при токе 1 мкА. Угол падения ионов составлял 45° при наполнении камеры кислородом до давления  $8 \cdot 10^{-6}$  торр. Исходный диаметр SIMS-пучка ионов  $\sim 0,1$  мм, однако для

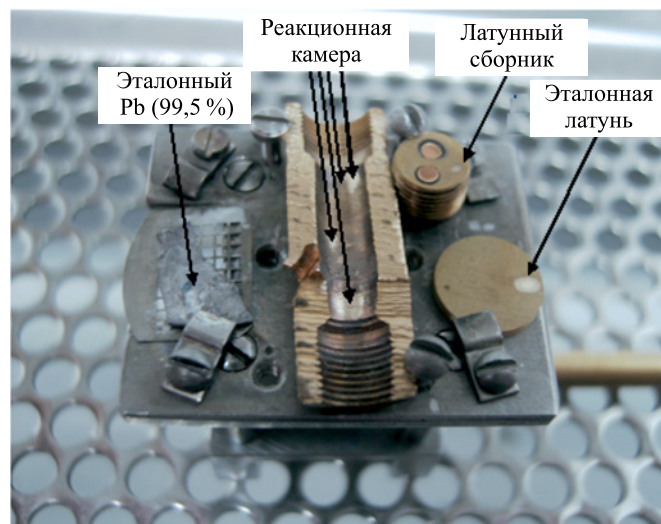


Рис. 9. Держатель с образцами латунного сборника, половинки реакционной камеры, двумя эталонными образцами свинца и латуни. На всех изученных образцах: латунном сборнике, эталонной латуни, половинке реакционной камеры и эталонном свинце — видны светлые области после GDMS- и SIMS-анализов

целей эффективного анализа пучок ионов был расфокусирован до  $\sim 0,5$  мм. Массовые спектры регистрировались в диапазоне  $M/Z = 0-250$  а.е.м. со скоростью сканирования по массам 2 с/а.е.м., а в несколько более узких диапазонах — по массам со скоростью сканирования 5, 10, 20 и 60 с/а.е.м.

Калибровка приборов при проведении массы моноизотопного висмута была выполнена на  $^{209}_{83}\text{Bi}$  (97,5 %) с примесью свинца (2 %), на свинце (99,5 %) и исходной латуни.

На рис. 9 представлено изображение держателя с образцами при исследовании методом SIMS с эталонными Pb (99,5 %) и латунью, половинкой реакционной камеры (рис. 1, поз. 8) и латунным сборником (рис. 1, поз. 12).

SIMS- и GDMS-спектры были получены с эрозией поверхности в каждом пятне при регистрации в массовой области 175–220 а.е.м.; дополнительно это же было выполнено и в массовой области 0–245 а.е.м. в этих пятнах. Эрозия в пятнах была вызвана образованием кратера глубиной 15 мкм и диаметром 1,5 мм. Ввиду малости сигнала от свинца было снято по пять спектров от каждого пятна.

Ниже представим массовый спектр, полученный при ионной бомбардировке исходной латуни. Этот результат важен, поскольку именно из этого материала и изготавливались реакционные камеры и сборники продуктов реакций [1–7]. Цель проведенных измерений — определение примесного

состава при детектировании SIMS с использованием ионов аргона и заполнением камеры кислородом. Особо отметим, что в анализе SIMS используется несколько методов для повышения вторичной ионной эмиссии. В случае исследований SIMS калибровочных и облученных  $\gamma$ -квантами образцов и для улучшения чувствительности применяются методы увеличения среднего положительного выхода ионов при окислении поверхности образца в процессе облучения ионами кислорода или заполнения газообразным кислородом. Сочетание обоих методов часто используется для увеличения степени окисления. Вообще говоря, чем сильнее ионная связь элементов с кислородом, тем выше их ионные выходы.

В выполненных экспериментах SIMS не использовался ионный пучок кислорода, а применялось заполнение вакуумной камеры газообразным кислородом до определенного давления, затем осуществлялась ионная бомбардировка  $\text{Ar}^+$ . Давление в вакуумной камере при наполнении газообразным кислородом составляло  $8 \cdot 10^{-6}$  торр. В действительности измеренные сигналы от ионов  $\text{Pb}^+$  и других металлических положительных ионов выше, чем при наличии газообразного кислорода.

Массовый спектр на рис. 10 демонстрирует основные компоненты состава исходной латуни — это медь и цинк. В качестве примесей присутствуют: углерод, натрий и калий. В массовом спектре пик от натрия наиболее интенсивный. Кроме того, обнаружены следы (traces) свинца.

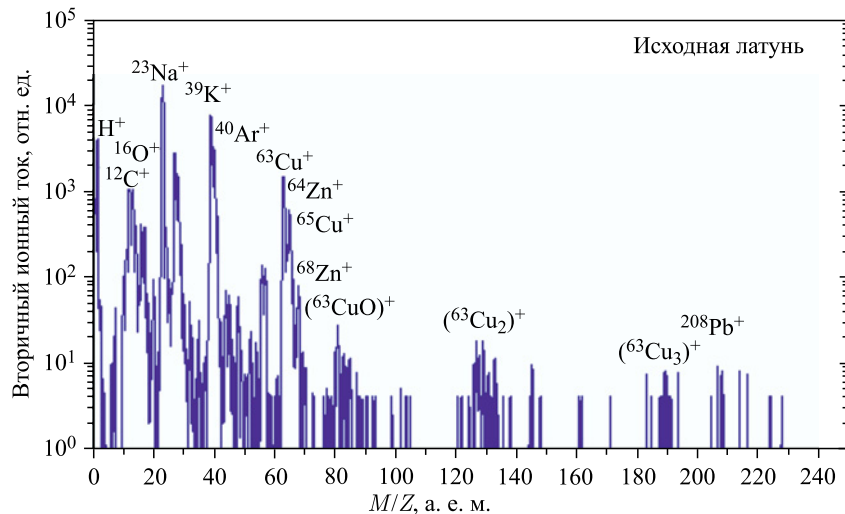


Рис. 10. SIMS-спектр исходной латуни в интервале масс  $M/Z = 0-250$  а. е. м. Скорость сканирования 2 с/а. е. м. Исходный пучок ионов:  $\text{Ar}^+$  с энергией 3 кэВ при токе 1 мкА. Давление наполнения кислородом  $P_{\text{O}_2} = 5 \cdot 10^{-6}$  торр

Как видно, интенсивность пика от  $^{208}\text{Pb}^+$  сравнима с пиком низкой интенсивности от  $(^{63}\text{Cu}_3)^+$ , что свидетельствует также о его низкой интенсивности.

На рис. 11 представлены массовые спектры GDMS эталонных (калибровочных)  $^{209}\text{Bi}$  (97,5 %) и  $\text{Pb}$  (99,5 %) в массовом интервале 175–220 а. е. м.

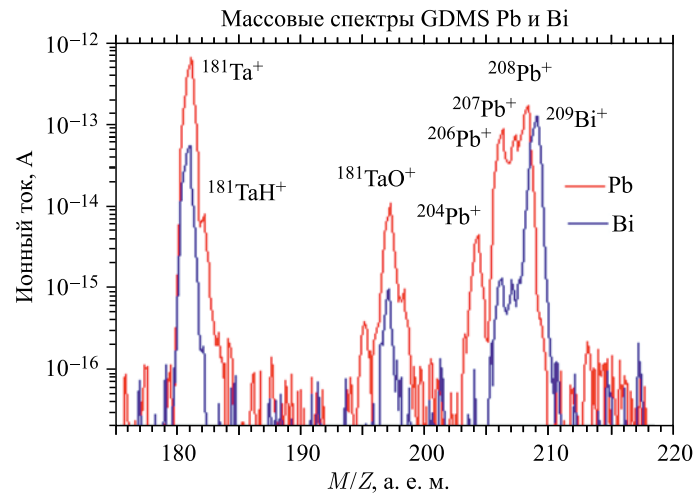


Рис. 11. GDMS-спектры висмута (97,5 %) и свинца (99,5 %) в массовой области 175–220 а. е. м.

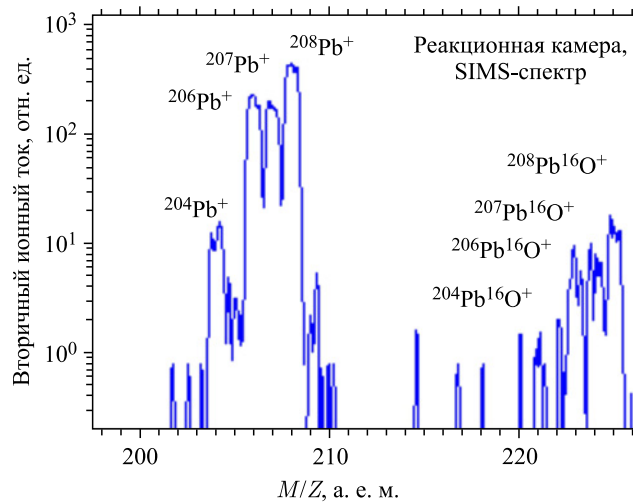


Рис. 12. Массовые спектры изотопов свинца с внутренних поверхностей реакционной камеры из латуни после ее облучения  $\gamma$ -квантами

Как видно из рис. 11, все массы изотопов свинца проявились, а масса изотопа висмута надежно зарегистрирована вблизи пика от  $^{208}\text{Pb}$ . Также на этом пике видны слева сбоку пики от свинца, присутствующего в висмуте в качестве примеси (2 %).

На рис. 12 представлены массовые спектры изотопов свинца с внутренних поверхностей реакционной камеры из латуни (рис. 1, поз. 8) после ее облучения  $\gamma$ -квантами. Помимо самого свинца, присутствуют довольно интенсивные массовые пики от оксидов изотопов свинца. На рис. 13 приведен для сравнения массовый спектр эталонного свинца (99,5 %).

Как видно из рис. 9–11, массы всех изотопов свинца разрешились. На рис. 13 пики оксидов свинца значительно менее интенсивные, чем на рис. 12, т. е. в синтезированном свинце.

В табл. 6 приведены для сравнения изотопные соотношения синтезированного свинца с поверхности двух половинок разрезанной пополам реакционной камеры, эталонного свинца (99,5 %) и природного.

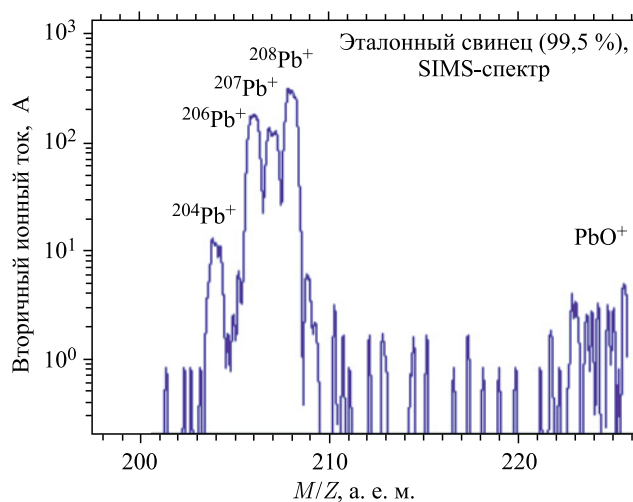


Рис. 13. SIMS-спектр эталонного свинца (99,5 %) в области 195–227 а. е. м.

**Таблица 6. Изотопные соотношения синтезированного свинца с поверхности двух половинок разрезанной пополам реакционной камеры, эталонного свинца (99,5 %) и природного**

Свинец	<i>M</i> , а. е. м.			
	204	206	207	208
Синтезированный	1,76	25,9	22,6	49,8
Эталонный (99,5 %)	2,01	28,5	21,2	48,3
Природный	1,41	24,1	22,1	52,4

Считая, что ошибка при измерении амплитуды пиков  $\sim 5\%$ , можно сделать вывод, что свинец с поверхности двух половинок разрезанной пополам реакционной камеры и эталонный свинец (99,5 %) более или менее соответствуют природному соотношению. Хотя было бы целесообразно промерить соотношение массовых пиков более тщательно, т. е. с большим разрешением по массам.

Измерение в более узком диапазоне по массам  $M/Z = 195-250$  а. е. м. с наполнением вакуумной камеры газообразным кислородом позволило получить массовый спектр, который приведен на рис. 14.

Как видно из рис. 14, в спектре присутствуют две новых тяжелых массы:  $M/Z \cong 231$  а. е. м. (возможно,  ${}^{231}_{91}\text{Pa}$ ) и  $M/Z \cong 246$  а. е. м. (возможно,  ${}^{246}_{96}\text{Cm}$  или  ${}^{247}_{96}\text{Cm}$ ). Важно отметить (см. пояснения после рис. 8), что не наблюдались пики при  $M/Z \cong 231$  а. е. м. и  $M/Z \cong 246$  а. е. м. без наполнения вакуумной камеры газообразным кислородом.

Рассмотрим возможные состояния окисления тяжелых металлов [24].

Свинец имеет два состояния окисления:  $\text{Pb}^{\text{II}}$ ,  $\text{Pb}^{\text{IV}}$ , поэтому образует два оксида:  $\text{PbO}$  и  $\text{PbO}_2$  с массами 220, 222, 223 и 224 а. е. м. и 236, 238, 239 и 240 а. е. м. соответственно. При этом в SIMS видны массы 220, 222, 223 и 224 а. е. м., но не зарегистрированы массы 236, 238, 239 и 240 а. е. м. (см. рис. 14).

Отметим, что протактиний относится к третьей группе таблицы Менделеева и имеет состояния окисления  $\text{Pa}^{\text{III}}$ ,  $\text{Pa}^{\text{IV}}$  и  $\text{Pa}^{\text{V}}$  [24], поэтому образует соединения типа  $\text{PaI}_3$  и высшие оксиды  $\text{Pa}_2\text{O}_5$  или  $\text{PaO}_2$  с молекулярными

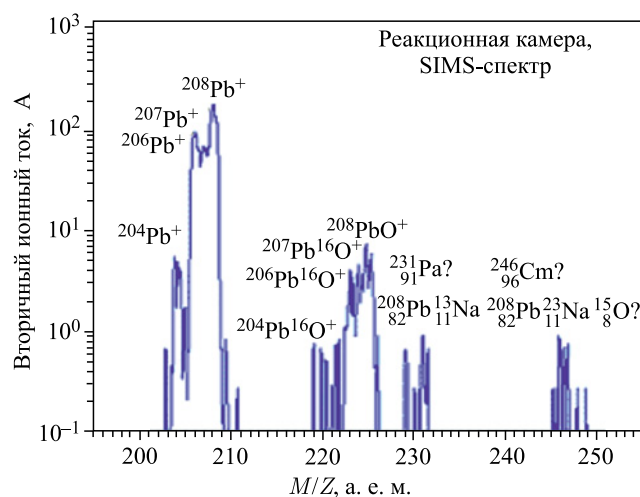


Рис. 14. SIMS-спектр в массовой области 195–250 а. е. м. Присутствуют две неизвестных массы:  $M/Z \cong 231$  а. е. м. и  $M/Z \cong 246$  а. е. м.



массами 612, 542 и 263 а. е. м. соответственно, а не измеренную ВИМС/SIMS массу 246/247 а. е. м.

Отметим также, что кюрий имеет три состояния окисления: Cm<sup>III</sup>, Cm<sup>IV</sup> и Cm<sup>V</sup> с оксидами: CmO, Cm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и CmO<sub>2</sub> [24], что соответствует массам 262, 540 и 278 а. е. м.

В принципе такие массы можно было бы поискать в массовом спектре, но так как не видно высших оксидов свинца, то и здесь ничего не увидеть.

Оценим разницы в массах молекул и атомов.

Атомные массы элементов <sup>231</sup><sub>91</sub>Pa и <sup>246</sup><sub>96</sub>Cm, т. е. сумма масс ядер и электронной оболочки, имеют значения (см. значения масс ядер и электрона в [8, 9]):

$$M_{e^-} = 5,48579903 \cdot 10^{-4} \text{ а. е. м.}; \quad (1)$$

$$M_{16\text{O}} = 15,9993026 \text{ а. е. м.}; \quad (2)$$

$$M_{23\text{Na}} = 22,99580278 \text{ а. е. м.}; \quad (3)$$

$$M_{208\text{Pb}} = 208,0216291 \text{ а. е. м.}; \quad (4)$$

$$M_{231\text{Pa}} = 231,0857975 \text{ а. е. м.}; \quad (5)$$

$$M_{246\text{Cm}} = 246,1198797 \text{ а. е. м.}; \quad (6)$$

$$M_{247\text{Cm}} = 247,1230100 \text{ а. е. м.} \quad (7)$$

Получены молекулярные массы двух молекул с массами, близкими к  $M/Z \cong 231$  а. е. м. и  $M/Z \cong 246$  а. е. м.:

$$M_{208\text{Pb}^{23}\text{Na}} = (22,99580278 + 208,0216291) \text{ а. е. м.} = 231,01743188; \quad (8)$$

$$M_{208\text{Pb}^{23}\text{Na}^{16}\text{O}} = (2,99580278 + 208,0216291 + \\ + 15,9993026) \text{ а. е. м.} = 247,01645788 \text{ а. е. м.} \quad (9)$$

Тогда оценим разницу в массах:

$$\Delta M_1 = M_{231\text{Pa}} - M_{208\text{Pb}^{23}\text{Na}} = \\ = (231,0857975 - 231,01743188) \text{ а. е. м.} = +0,06836562 \text{ а. е. м.}; \quad (10)$$

$$\Delta M_2 = M_{246\text{Cm}} - M_{208\text{Pb}^{23}\text{Na}^{16}\text{O}} = \\ = (246,1198797 - 247,01645788) \text{ а. е. м.} = -0,89657818 \text{ а. е. м.}; \quad (11)$$

$$\Delta M_3 = M_{246\text{Cm}} - M_{208\text{Pb}^{23}\text{Na}^{16}\text{O}} = \\ = (247,1230100 - 247,01645788) \text{ а. е. м.} = +0,10655212 \text{ а. е. м.} \quad (12)$$

Сравнивая (5) и (10), (6) и (11), (7) и (12), можно сделать вывод, что для однозначного определения методом SIMS наличия или отсутствия двух тяжелых элементов  $^{231}_{91}\text{Pa}$ ,  $^{246}_{96}\text{Sm}$  и присутствия  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}$  и  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}^{16}_8\text{O}$  требуется более высокое разрешение по массам регистрируемых атомов.

Следует также отметить, что в работе [12] при изучении влияния воды на образование кластеров в процессе ионной бомбардировки пленок  $\text{PbO}_2$  были обнаружены молекулы  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}$ .

*Из данного раздела можно сделать следующие выводы.* Измерены SIMS-спектры, которые были получены на трех образцах: исходной латуни, исходного калибровочного свинца и образца половинки латунной реакционной камеры после облучения  $\gamma$ -квантами.

1. Исходная латунь содержит следы свинца при низкой его концентрации.
2. SIMS-анализ показал: в образце исходного калибровочного свинца обнаружены молекулярные вторичные ионы, в том числе масса  $M/Z \cong 231$  а. е. м., что соответствует ионам  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}$  (см. также [12]).
3. Массовые спектры облученной реакционной камеры показывают присутствие основных компонентов — меди и цинка. Также они выявляют такие примеси, как углерод, натрий и калий. Результаты показывают, что при ионной бомбардировке образуются и молекулярные ионы. В частности, эти ионы представлены молекулярными ионами  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}$  с массой  $M/Z \cong 231$  а. е. м. Таким образом, присутствие в образце протактиния можно ассоциировать с молекулярным ионом примерно с той же массой (см. (5), (8) и (10)):  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}$ . Следовательно, зарегистрированный пик  $M/Z \cong 231$  а. е. м. не может быть однозначно идентифицирован как протактиний.

Это заключение касается и пика  $M/Z \cong 246$  а. е. м., который не может быть однозначно идентифицирован как кюрий, ввиду наличия молекулярного иона  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}^{16}_8\text{O}$  (см. (6), (7), (9) и (11), (12)).

*Некоторые комментарии к SIMS высокого разрешения.* Квадрупольный масс-спектрометр имеет разрешение в 1 а. е. м. Это означает, что можно различить, например, массу 300 а. е. м. и массу 301 а. е. м. В нашем случае был использован SAJW-05 — SIMS-анализатор, который также оснащен квадрупольным масс-анализатором. Таким образом, все, что можно сделать на таком спектрометре, — это зарегистрировать пики с массами  $M/Z \cong 231$  а. е. м. и  $M/Z \cong 246$  а. е. м.

Для того чтобы разрешить массу  $^{231}_{91}\text{Pa}$  от  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}$  или массы  $^{246}_{96}\text{Sm}$  и  $^{247}_{96}\text{Sm}$  от  $^{206}_{82}\text{Pb}^{23}_{11}\text{Na}^{16}_8\text{O}$ , необходимо использовать секторный магнитный анализатор (magnetic sector mass analyser). В таком спектрометре разрешение по массам определяется из выражения  $R = \frac{M}{\Delta M}$ . Характерное разрешение этих анализаторов  $R = 1000\text{--}50\,000$ .

На рис. 15 приведено несколько примеров SIMS изотопных исследований геологических образцов [13].

Этот анализ был проведен с использованием на анализаторе высокой интенсивности спектрометра «Cameca ims 1270 instrument» (NORDSIM facility) с высоким разрешением в Шведском музее естественной истории (см. [14, 15]).

Сделаем оценку, чтобы узнать, какое разрешение требуется в нашем случае. Тогда для разделения массы  ${}^{231}_{91}\text{Pa}$  от массы  ${}^{206}_{82}\text{Pb}{}^{23}_{11}\text{Na}$ , массы  ${}^{246}_{96}\text{Cm}$  от массы  ${}^{206}_{82}\text{Pb}{}^{23}_{11}\text{Na}{}^{16}_8\text{O}$  и массы  ${}^{247}_{96}\text{Cm}$  от массы  ${}^{206}_{82}\text{Pb}{}^{23}_{11}\text{Na}{}^{16}_8\text{O}$  используем (10)–(12) и получим

$$R_1 = \frac{M_{{}^{231}_{91}\text{Pa}}}{\Delta M_1} = 3379, \quad (13)$$

$$R_2 = \frac{M_{{}^{246}_{96}\text{Cm}}}{\Delta M_2} = 274, \quad (14)$$

$$R_3 = \frac{M_{{}^{247}_{96}\text{Cm}}}{\Delta M_3} = 2318. \quad (15)$$

Следовательно, секторный магнитный масс-спектрометр подходит для этих целей и позволяет разрешить массовые пики от молекулярных ионов и от атомов  ${}^{231}_{91}\text{Pa}$  с массой 231 а. е. м.,  ${}^{246}_{96}\text{Cm}$  и  ${}^{247}_{96}\text{Cm}$  с массами 246 и 247 а. е. м. Однако высокое разрешение для выпускаемых различными фирмами анализаторов  $\sim 16\,000$  реализуется только для пиков с близкими амплитудами. Поэтому если один из пиков значительно ниже другого, то разрешение должно быть выше. Отметим, что два спектрометра — «Cameca 7f» и SHRIMP — достигают разрешения  $R \cong 16\,000$ .

Ввиду отсутствия возможностей измерить методом SIMS масс-изотопный состав на анализаторах высокого разрешения, были измерены выходы  $\alpha$ -частиц с использованием чувствительных  $\alpha$ -спектрометров.

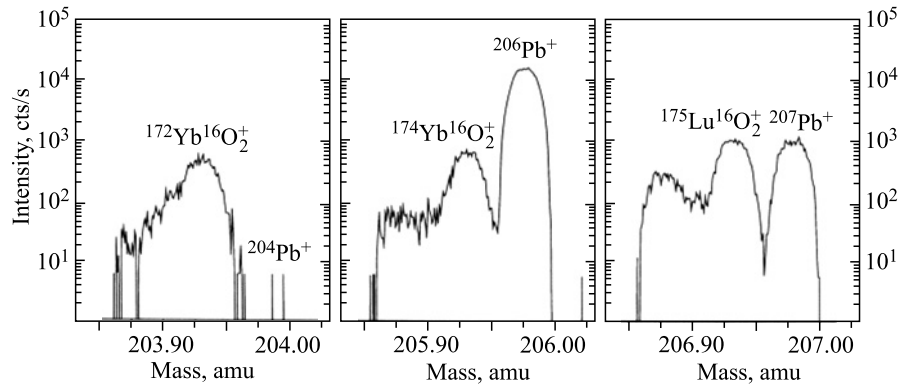
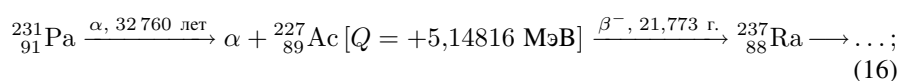


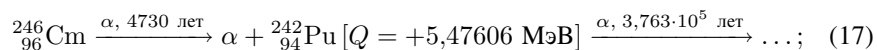
Рис. 15. SIMS изотопные исследования геологических образцов [13]

### 3. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ $\alpha$ -СПЕКТРОМЕТРОВ («CANBERRA») ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ $\alpha$ -ЧАСТИЦ ОТ РАСПАДОВ ТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ ${}^{231}_{91}\text{Pa}$ И ${}^{246}_{96}\text{Cm}$

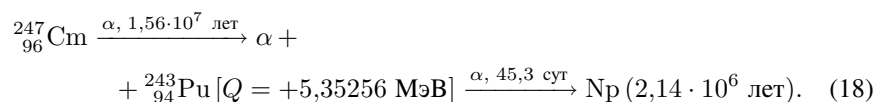
Обнаруженные пики предполагаемых тяжелых элементов  ${}^{231}_{91}\text{Pa}$ ,  ${}^{246}_{96}\text{Cm}$  с учетом разд. 2 (см. также [12]) было необходимо идентифицировать также с помощью других ядерно-физических методов [16]. Как известно [8, 9], протактиний  ${}^{231}_{91}\text{Pa}$  распадается с периодом полураспада  $T_{231\text{Pa}} = 32\,760$  лет на  $\alpha$ -частицы с энергиями 5,06; 5,03; 5,01; 4,95 и 4,73 МэВ:



кюрий  ${}^{246}_{96}\text{Cm}$  распадается с периодом полураспада  $T_{246\text{Cm}} = 4730$  лет на  $\alpha$ -частицы с более высокими энергиями — 5,39 и 5,34 МэВ:



кюрий  ${}^{247}_{96}\text{Cm}$  распадается с периодом полураспада  $T_{247\text{Cm}} = 1,56 \cdot 10^7$  лет на  $\alpha$ -частицы с менее высокими энергиями 5,27 и 4,87 МэВ:



Измерения с двух половинок разрезанной пополам реакционной камеры (см. рис. 1, поз. 8) проводились в одной из камер интегрированного  $\alpha$ -спектрометра «Alpha Analyst» фирмы «Canberra» с использованием программного обеспечения Genie-2000. Внешний вид спектрометра приведен на рис. 16.

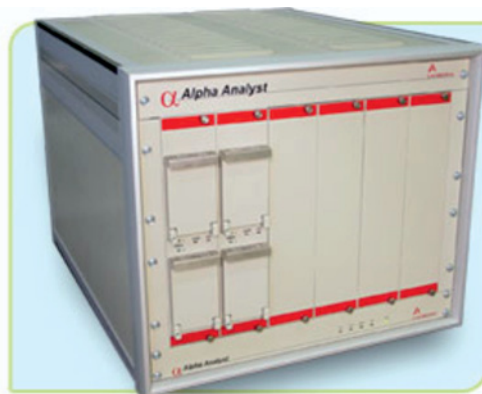


Рис. 16. Внешний вид спектрометра «Alpha Analyst» фирмы «Canberra»

Спектрометр может включать до 6 модулей. В состав каждого модуля входят две камеры с детекторами, усилители, аналого-цифровой преобразователь, источник питания, генератор точной амплитуды и система управления вакуумными вентилями. Для снижения фона, вызванного ядрами отдачи, на подложку образца подается напряжение смещения. В корпусе настольного прибора находятся общий блок питания и интерфейс. Прибор подключается к управляющему компьютеру по сети Ethernet. В качестве детекторов использовались пассивированные ионно-имплантированные планарные кремниевые детекторы (Passivated Implanted Planar Silicon, PIPS) серии А модели А600-25АМ производства фирмы «Canberra». Эти детекторы предназначены для спектрометрии  $\alpha$ -излучения, имеют тонкое входное окно, обеспечивающее хорошее энергетическое разрешение даже при малых расстояниях источник–детектор, и обладают высокой эффективностью регистрации  $\alpha$ -частиц. Пониженный ток утечки минимизирует сдвиг пиков при изменениях температуры. Детекторы серии А производятся из специально отобранных низкофоновых материалов. Для предотвращения загрязнения эти детекторы тестируются в специальных низкофоновых условиях. Благодаря этому скорость счета фоновых импульсов в диапазоне от 3 до 8 МэВ не превышает 0,05 имп./ч/см<sup>2</sup>. Толщина детекторов серии А составляет не менее 140 мкм, что является достаточным для полного поглощения  $\alpha$ -частиц с энергиями вплоть до 15 МэВ. Детекторы серии А поставляются с разъемом MICRODOT. В табл. 7 приведены характеристики PIPS-детекторов, используемых при измерениях  $\alpha$ -излучения.

**Таблица 7. Характеристики детекторов PIPS серии А**

Площадь, мм <sup>2</sup>	Разрешение для $\alpha$ -частиц, кэВ	Типичный фон, имп./сут	Номер модели
600	25	8	А600-25АМ

В первой серии измерений детектируемый диапазон  $\alpha$ -частиц был выбран от 4,0 до 5,1 МэВ с тем, чтобы в него попали  $\alpha$ -частицы от распада  $^{231}_{91}\text{Pa}$ . Диапазон измерений был выбран с учетом значений энергии  $\alpha$ -частицы и того факта, что внутренние поверхности двух половинок разрезанной пополам реакционной камеры (рис. 1, поз. 8) имели радиус закругления 4 мм, поэтому эмиссия  $\alpha$ -частиц из поверхности, покрытой свинцом, происходила и по этой причине под разными углами. На рис. 17 представлены измерения фона  $\alpha$ -спектрометра ( $\otimes$ ) и «эффекта», т. е. эмиссии  $\alpha$ -частиц ( $\oplus$ ), с двух внутренних поверхностей разрезанной пополам реакционной камеры. Обе половинки приближались к  $\alpha$ -детектору на минимальное расстояние. Измерения проводились последовательно: пять суток измерялся фон спектрометра, а затем «эффект», также в течение пяти суток, и эта процедура повторялась четыре раза.

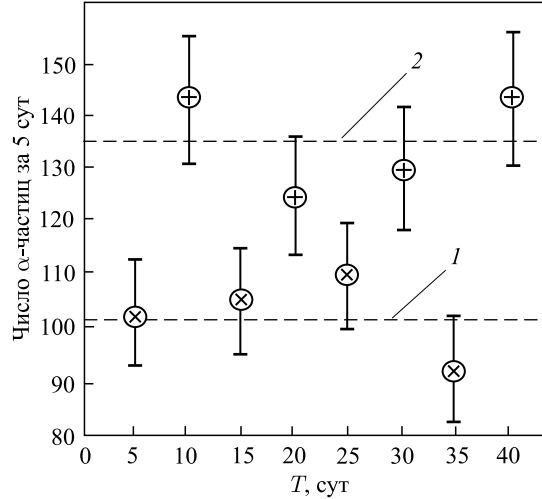


Рис. 17. Измерения фона  $\alpha$ -спектрометра ( $\otimes$ ) и эмиссии  $\alpha$ -частиц от  ${}^{231}_{91}\text{Pa}$  с фоном ( $\oplus$ ); 1 и 2 — среднеквадратичные значения фона и «эффекта» вместе с фоном

Как видно из рис. 17, наблюдается заметное превышение эмиссии  $\alpha$ -частиц над уровнем фона. Отсюда можно сделать однозначный вывод о том, что из мелкодисперсного, но с имеющимися крупными частицами, свинца (см. [1–4] и разд. 2 данной работы) действительно происходит эмиссия  $\alpha$ -частиц. Отметим, что эмиссия  $\alpha$ -частиц происходит не только в направлении расположения PIPS-детекторов (они располагались сверху над разрезанными половинками реакционной камеры (см. рис. 1, поз. 8)), но и в геометрии  $4\pi$ , т. е. число отсчетов надо умножить как минимум на два.

Результаты измерений образца и фона в течение времени  $t = 4,32 \cdot 10^5$  с (5 сут) в интервале энергий  $\alpha$ -частиц  $\Delta E_{231\text{Pa}} = 4,0\text{--}5,1$  МэВ с каналами электроники 164–553 представлены в табл. 8.

**Таблица 8. Результаты измерений образца за время  $t = 4,32 \cdot 10^5$  с (5 сут) в интервале энергий  $\Delta E_{231\text{Pa}} = 4,0\text{--}5,1$  МэВ (каналы 164–553)**

Номер п/п	Реакционная камера		Фон детектора	
	$N_{\text{Pa}}$	$\sigma_{\text{Pa}}$	$N_{\text{фон}}$	$\sigma_{\text{фон}}$
1	143	$\pm 11,96$	102	$\pm 10,10$
2	125	$\pm 11,2$	105	$\pm 10,25$
3	130	$\pm 11,4$	110	$\pm 10,49$
4	144	$\pm 12,0$	92	$\pm 9,59$
$\bar{N}, \bar{\sigma}$	135,5	$\pm 11,64$	102,25	$\pm 10,11$

По итогам четырех измерений образца, в котором, как предполагалось, присутствует тяжелый металл  $^{231}_{91}\text{Pa}$ , количество импульсов в интервале энергий  $\Delta E_{^{231}_{91}\text{Pa}} = 4,0-5,1$  МэВ составило в среднем

$$\overline{N}_{\text{эффект+фон}} = 136 \pm 12 (\alpha\text{-частиц})/(5 \text{ сут}), \quad (19)$$

т. е. за время  $t = 4,32 \cdot 10^5$  с. Средний фон в этом же интервале энергий за то же время составил

$$\overline{N}_{\text{фон}} = 102 \pm 10 (\alpha\text{-частиц})/(5 \text{ сут}). \quad (20)$$

Эффективность регистрации  $\alpha$ -частиц при данной конфигурации мишени составляет приблизительно 17 %.

Период полураспада протактиния  $^{231}_{91}\text{Pa}$  [8, 9, 24]

$$T_{1/2} = 32\,760 \text{ лет} = 1,03311936 \cdot 10^{12} \text{ с}. \quad (21)$$

Время нашего измерения составляло пять суток, т. е.  $t = 4,32 \cdot 10^5$  с. Так как только половина  $\alpha$ -частиц от распада  $^{231}_{91}\text{Pa}$  попадает в  $\alpha$ -детектор с его эффективностью регистрации около 17 %, для минимального числа  $\alpha$ -частиц имеем  $\overline{N}_{\alpha}^{(1)} = \overline{N}_{\text{эффект+фон}}^{(1)} - \overline{N}_{\text{фон}}^{(1)} \approx 34$   $\alpha$ -частицы, для полного числа ядер протактиния  $N_{^{231}_{91}\text{Pa}}^{(1)}$  в изученных образцах получаем

$$\begin{aligned} \overline{N}_{\alpha}^{(1)} &\geq 0,17 \cdot 0,5 \cdot N_{^{231}_{91}\text{Pa}}^{(1)} \{1 - \exp(t/T_{1/2})\} \cong \\ &\cong 0,085 \cdot N_{^{231}_{91}\text{Pa}}^{(1)} \cdot t/T_{1/2} = 34 \alpha\text{-частицы}. \end{aligned} \quad (22)$$

Тогда примерное количество атомов протактиния

$$\begin{aligned} N_{^{231}_{91}\text{Pa}}^{(1)} &\approx 34 \frac{T_{1/2}}{t} / 0,085 = 34 \cdot 1,03311936 \cdot 10^{12} / (4,32 \cdot 10^5) / 0,085 = \\ &= (9,57 \pm 1,85) \cdot 10^8 \text{ атомов Pa}. \end{aligned} \quad (23)$$

Во второй серии экспериментов была предпринята попытка проверить наличие  $\alpha$ -частиц от возможного присутствия атомов  $^{246}_{96}\text{Cm}$  в синтезированном в результате облучения ДНРС тормозным излучением с максимальной энергией 10 МэВ свинцовом покрытии внутренних стенок реакционной камеры. Это было проделано в связи с тем, что в SIMS масс-изотопном анализе была обнаружена масса  $M/Z \cong 246-247$  а. е. м. Оценочное значение числа отсчетов в максимуме массового распределения примерно одинаковое как для  $^{231}_{91}\text{Pa}$ , так и для  $^{246}_{96}\text{Cm}$ . В первом измерении эмиссии  $\alpha$ -частиц использовался тщательно отмытый от радиоактивных загрязнений измерительный

модуль спектрометра «Alpha Analyst» фирмы «Canberra», который неоднократно использовался для измерения активностей. Именно поэтому его уровень фона варьировался от  $92 \pm 9,59$  имп. до  $110 \pm 10,49$  имп. за пять суток, хотя паспортное значение спектрометра (см. табл. 6) для типичного фона примерно 8 имп./сут, т. е. в первом измерении фон был от 2,3 до 2,75 раза выше, чем типичный. Поэтому во втором измерении был использован совершенно новый модуль от другого спектрометра «Alpha Analyst» фирмы «Canberra», который до этого не применялся, т. е. имел естественный фон, а именно более низкий уровень фона — менее 8 имп./сут.

В этом случае измерения фона и «эффекта» проводились в детектируемом диапазоне энергий  $\alpha$ -частиц, который был выбран опять от 4,0 до 5,1 МэВ с тем, чтобы в этот диапазон попали  $\alpha$ -частицы от распада  $^{231}\text{Pa}$ :  $E_{^{231}\text{Pa}}^\gamma = 4,73; 4,95; 5,01; 5,03$  и  $5,06$  МэВ (см. табл. 8 и рис. 17, на котором приведены измерения «эффекта» и фона). Дополнительно, примерно через 18 мес, были выполнены измерения в ранее промеренном диапазоне энергий (4,0–5,1 МэВ) и в диапазоне энергий  $\alpha$ -частиц от 5,1 до 5,4 МэВ с тем, чтобы в нем можно было зарегистрировать  $\alpha$ -частицы от распада  $^{246}\text{Cm}$ , который имеет две линии с более высокими энергиями  $E_{^{246}\text{Cm}}^\gamma = 5,34$  и  $5,39$  МэВ (см. табл. 9 и рис. 18, на котором приведены измерения «эффекта» и фона). Как хорошо видно из рис. 17 и 18, полученные данные по значительному превышению сигнала («эффекта») над уровнем фона однозначно подтверждают то, что свинцовые частицы и свинцовое покрытие на поверхности реакционной камеры были синтезированы в процессе облучения  $\gamma$ -квантами с энергией 10 МэВ при давлении дейтерия 1,2 кбар (см. [1–4]), и то, что в этом свинце присутствуют и протактиний  $^{231}\text{Pa}$ , и кюрий  $^{246}\text{Cm}$ .

В табл. 9 представлены число  $\alpha$ -частиц и фон, измеренные в интервалах энергии  $\Delta E_{^{231}\text{Pa}} = 4,0\text{--}5,1$  МэВ (диапазон каналов — 164–553) и  $\Delta E_{^{246}\text{Cm}} = 5,1\text{--}5,4$  МэВ (диапазон каналов — 554–637) в течение  $t = 4,32 \cdot 10^5$  с (5 сут).

На рис. 18 приведены результаты измерения фона  $\alpha$ -спектрометра ( $\otimes$ ) и эмиссии  $\alpha$ -частиц от  $^{231}\text{Pa}$  с фоном ( $\oplus$ ), а также среднеквадратичные значения фона и «эффекта» вместе с фоном (1 и 2).

На рис. 19 представлены результаты измерения фона  $\alpha$ -спектрометра ( $\otimes$ ) и эмиссии альфа-частиц от  $^{246}\text{Cm}$  с фоном ( $\oplus$ ), среднеквадратичные значения фона и «эффекта» вместе с фоном (1 и 2).

Аналогично расчету, проведенному в (21) и (22), можно оценить полное количество ядер протактиния во втором измерении:

$$N_{^{231}\text{Pa}}^{(2)} \approx 19,55 \frac{T_{1/2}}{t} / 0,085 = 19,55 \cdot 1,03311936 \cdot 10^{12} / (4,32 \cdot 10^5) / 0,085 \rightarrow \\ \rightarrow (5,50 \pm 2,13) \cdot 10^8 \text{ атомов Pa.} \quad (24)$$



Таблица 9. Количество зарегистрированных  $\alpha$ -частиц и фон, измеренные в интервалах энергий 4,0–5,1 МэВ (диапазон каналов — 164–553) и 5,1–5,4 МэВ (диапазон каналов — 554–637) в течение  $4,32 \cdot 10^5$  с (5 сут)

Номер п/п	$\Delta E_{231\text{Pa}} = 4,0\text{--}5,1$ МэВ				$\Delta E_{246\text{Cm}} = 5,1\text{--}5,4$ МэВ			
	$N_{\text{Pa+фон}}$	$\sigma_{\text{Pa+фон}}$	$N_{\text{фон}}$	$\sigma_{\text{фон}}$	$N_{\text{Cm+фон}}$	$\sigma_{\text{Cm+фон}}$	$N_{\text{фон}}$	$\sigma_{\text{фон}}$
1	22	$\pm 4,69$	6	$\pm 2,45$	10	$\pm 3,16$	0	$\pm 15$
2	32	$\pm 5,66$	4	$\pm 2,0$	3	$\pm 1,73$	2	$\pm 1,41$
3	24	$\pm 4,90$	7	$\pm 2,65$	3	$\pm 1,73$	1	$\pm 1,0$
4	24	$\pm 4,90$	8	$\pm 2,83$	9	$\pm 3,0$	6	$\pm 2,45$
5	27	$\pm 5,20$	—	—	—	—	—	—
$\bar{N}, \bar{\sigma}$	25,8	$\pm 5,08$	6,25	$\pm 2,5$	6,25	$\pm 2,5$	2,25	$\pm 1,5$

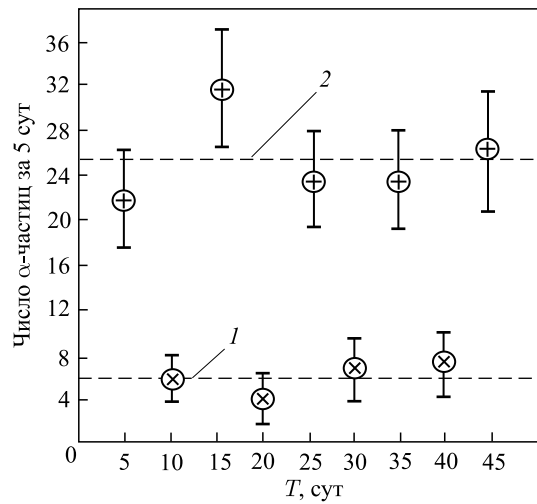


Рис. 18. Измерения фона  $\alpha$ -спектрометра ( $\otimes$ ) и эмиссии  $\alpha$ -частиц от  $^{231}\text{Pa}$  с фоном ( $\oplus$ ); 1 и 2 — среднеквадратичные значения фона и «эффекта» вместе с фоном

Сравнивая полученные диапазоны значений полного количества атомов протактиния, видим, что они перекрываются в пределах среднеквадратичных ошибок:  $N_{231\text{Pa}}^{(2)} \approx (5,50 \pm 2,13) \cdot 10^8$  атомов Pa и  $N_{231\text{Pa}}^{(1)} \approx (9,57 \pm 1,85) \times 10^8$  атомов Pa.

Период полураспада кюрия  $^{246}\text{Cm}$  [8, 9, 24]

$$T_{1/2} = 4730 \text{ лет} = 1,4916528 \cdot 10^{11} \text{ с.} \quad (25)$$

Время нашего измерения составляло пять суток, т. е.  $t = 4,32 \cdot 10^5$  с.

Так как только половина  $\alpha$ -частиц от распада  $^{246}_{96}\text{Cm}$  попадает в  $\alpha$ -детектор с эффективностью регистрации около 17 %, для минимального числа  $\alpha$ -частиц  $\overline{N}_{\alpha}^{(3)} = \overline{N}_{\text{эффект+фон}}^{(3)} - \overline{N}_{\text{фон}}^{(3)} \approx 4$   $\alpha$ -частицы можно написать соотношение

$$N_{\alpha}^{(3)} \geq 0,17 \cdot 0,5 \cdot N_{^{246}_{96}\text{Cm}}^{(3)} \{1 - \exp(-t/T_{1/2})\} \cong \\ \cong 0,085 \cdot N_{^{246}_{96}\text{Cm}}^{(3)} \cdot t/T_{1/2} = 4 \text{ } \alpha\text{-частицы.} \quad (26)$$

Отсюда получаем примерное количество атомов кюрия

$$N_{^{246}_{96}\text{Cm}}^{(3)} \approx 4 \frac{T_{1/2}}{t} / 0,085 = 1,4916528 \cdot 10^{11} / (4,32 \cdot 10^5) / 0,085 = \\ = 1,62 \cdot 10^7 \text{ атомов Cm.} \quad (27)$$

Тем самым из табл. 8, рис. 17 и выражения (23), а также результатов, полученных примерно через 18 мес после проведенных измерений и представленных в табл. 9, на рис. 18 и в выражении (24), можно однозначно

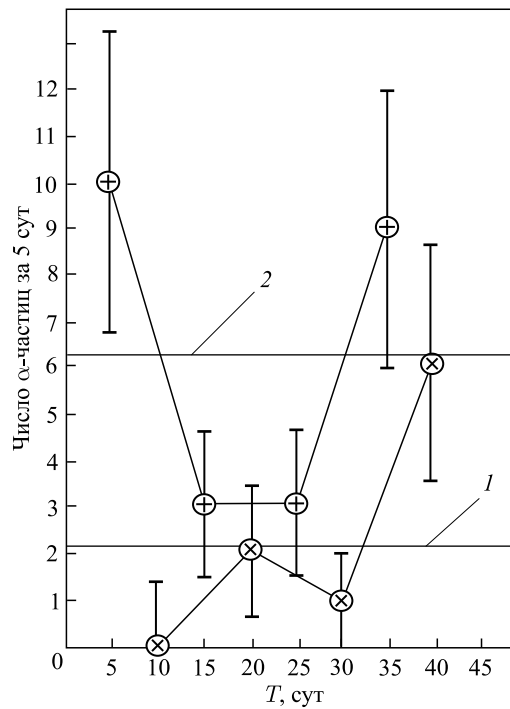


Рис. 19. Измерения фона  $\alpha$ -спектрометра ( $\otimes$ ) и эмиссии  $\alpha$ -частиц от  $^{246}_{96}\text{Cm}$  с фоном ( $\oplus$ ); 1 и 2 — среднеквадратичные значения фона и «эффекта» вместе с фоном

заклЮчить, что в свинце, покрывающем поверхность реакционной камеры, присутствует протактиний.

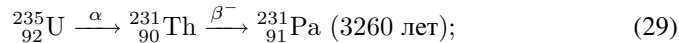
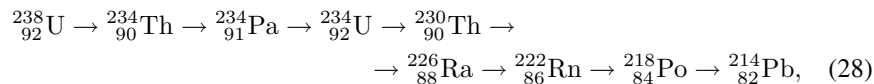
Из результатов измерения  $\alpha$ -частиц от  $^{246}_{96}\text{Cm}$  (табл. 9, рис. 19 и выражение (26)) также можно говорить о присутствии этого искусственного элемента, но его концентрация значительно меньше, чем протактиния. Этот последний факт как раз закономерен.

#### 4. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ТРЕКОВЫХ ДЕТЕКТОРОВ CR-39 ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ $\alpha$ -ЧАСТИЦ ОТ РАСПАДОВ ТЯЖЕЛЫХ ЭЛЕМЕНТОВ $^{231}_{91}\text{Pa}$ И $^{246}_{96}\text{Cm}$

Как хорошо известно [17–19], существующие трековые детекторы позволяют регистрировать заряженные частицы, такие как протоны, дейтроны и  $\alpha$ -частицы, с энергиями от 1 МэВ до более высоких (порядка 10 МэВ). К таким детекторам относятся наиболее чувствительные полимерные детекторы CR-39.

Для проверки эмиссии  $\alpha$ -частиц из внутренних поверхностей разрезанной пополам реакционной камеры (см. рис. 1, поз. 8) в произвольном диапазоне энергий, т. е. от порога чувствительности трекового детектора CR-39 по энергии и массе заряженной частицы, обе половинки реакционной камеры в держателе были помещены вплотную к пластинке-фольге CR-39 с размером  $25 \times 25$  мм и толщиной 200 мкм в специальную камеру, которая была откачена до  $10^{-4}$  торр и затем оставлена на два месяца в таком положении. После 60 сут контакта детектора CR-39 с половинками ДНРС камера была вскрыта, при этом в ней находился остаточный вакуум, образцы и детектор были вынуты. Облученный и контрольный образцы (трековых детекторов CR-39) были протравлены (см. [17–19]) до диаметров примерно 10 мкм на входе в конусный трек на поверхности в растворе 5 нормалей щелочи (NaCl) при температуре 80 °С. Протравленные в одинаковых условиях облученный и контрольный образцы из одной партии изготовления были изучены на сканирующем микроскопе TM 3000 (Tabletop microscope) фирмы «Hitachi».

Как хорошо известно, продукты распада урана следующие (см. ниже цепочку распада):



они также испускают  $\alpha$ -частицы, например радон ( $^{222}_{86}\text{Rn}$ ,  $^{218}_{86}\text{Rn}$ ), с энергиями 4,77 и 5,46 МэВ. Поэтому долго пролежавшие трековые детекторы

CR-39 (в виде пластинок-фольг) накапливают латентные треки от  $\alpha$ -частиц радона, которые так же протравливаются, как и треки  $\alpha$ -частиц от  ${}^{231}_{91}\text{Pa}$ , регистрируемые этими детекторами. Ввиду этого необходимо оценить концентрацию на детекторах этих «фоновых» треков. На рис. 20 приведены характерные ямки (конические лунки) от  $\alpha$ -частиц после травления.

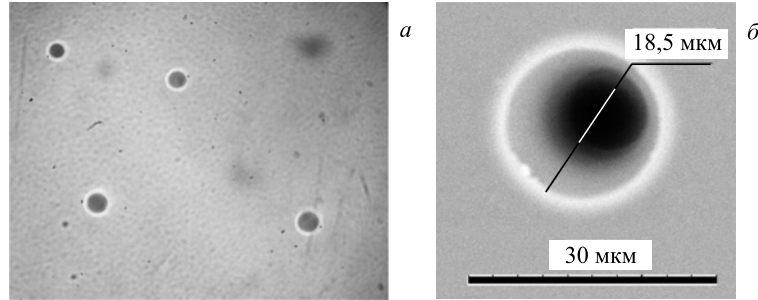


Рис. 20. Фотографии с оптического микроскопа: треков (в виде лунок) диаметром примерно 15 мкм на поверхности трекового детектора CR-39 (а) и одной лунки (б)

Плотность треков можно оценить так: площадь фотографии  $S = 402 \text{ мкм} \cdot 293 \text{ мкм} = 1,17786 \cdot 10^5 \text{ мкм}^2 \approx 1,8 \cdot 10^{-3} \text{ см}^2$ , тогда плотность треков на данной площади

$$n \leq 3/1,8 \cdot 10^{-3} = 2,5 \cdot 10^3 \text{ трек/см}^2. \quad (30)$$

Здесь необходимо отметить, что распределение центров эмиссии  $\alpha$ -частиц из ядер протактиния (а возможно, и ядер кюрия), во-первых, носит статистический характер; во-вторых, они расположены неравномерно по изученным поверхностям двух половинок реакционной камеры (рис. 1, поз. 8) и сборника продуктов реакций (рис. 1, поз. 12), т. е., скорее всего, точно — в местах, где были подходящие условия для протекания ядерных реакций; в-третьих, их концентрация мала, поэтому была сделана обработка результатов, которая проводилась по полученным 20 РЭМ-изображениям «эффекта» и 35 РЭМ-изображениям фона, т. е. с необлученных участков CR-39 с больших площадей поверхности для улучшения статистики. По результатам обработки были получены следующие оценки (*именно оценки*) для средних значений плотности треков на контрольном образце —  $\bar{n}_{\text{исх}}$  и на облученном —  $\bar{n}_{\text{общ}}$ :

$$\bar{n}_{\text{исх}} = \sum_{i=1}^{50} n_{i,\text{исх}}/50 \approx 2,47 \cdot 10^2 \text{ трек/см}^2; \quad (31)$$

$$\bar{n}_{\text{общ}} = \sum_{i=1}^{50} n_{i,\text{общ}}/50 \approx 4,18 \cdot 10^2 \text{ трек/см}^2. \quad (32)$$

Площадь двух половинок реакционной камеры, с которой проходила эмиссия  $\alpha$ -частиц, где одна из половинок была частично распилена при SIMS-анализе (см. рис. 9), можно оценить как  $S_{p.k.} \sim 0,3 \text{ см} \cdot 1,5 \text{ см} = 0,45 \text{ см}^2$ . Тогда оценочное число треков от  $\alpha$ -частиц из образцов реакционной камеры можно получить из выражения

$$\begin{aligned} \bar{n}_{\alpha\text{-частиц}} &\approx S_{p.k.} (\bar{n}_{\text{общ}} - \bar{n}_{\text{исх}}) = \\ &= 0,45 \cdot (4,18 \cdot 10^2 - 2,47) = 77(\alpha\text{-частиц})/5 \text{ сут} \quad (33) \end{aligned}$$

при эффективности регистрации порядка 10 % и точности измерений при относительно малой плотности треков на  $1 \text{ см}^2$  не лучше  $\leq 5\text{--}10\%$ .

Сравнивая результаты измерений эмиссии  $\alpha$ -частиц в разд. 3 при их регистрации  $\alpha$ -спектрометром (см. выражения (19) и (20)) и в данном разделе, можно сделать вывод, что значения плотности треков  $\alpha$ -частиц:  $33 \pm 6$   $\alpha$ -частиц в разд. 3 и 77  $\alpha$ -частиц в данном разделе — различаются примерно в 2,33 раза.

По результатам этого раздела можно сделать вывод о том, что действительно из обеих половинок реакционной камеры идет эмиссия  $\alpha$ -частиц.

Для уточнения результатов примерно через шесть месяцев после исследований, описанных в этом разделе выше, были подготовлены две новые из той же партии пластинки-фольги CR-39, которые были отожжены на воздухе в программируемой муфельной печи при температуре  $180^\circ\text{C}$  в течение одного часа для отжига треков от радиоактивных элементов типа радона (см. рекомендации по отжигу в монографии [18]). Затем обе пластинки-фольги CR-39 были помещены в специальную вакуумную камеру (как и в первом вышеописанном случае этого раздела), при этом одна пластинка-фольга CR-39 была, как и ранее, помещена вплотную к обеим половинкам разрезанной пополам реакционной камеры, а вторая — контрольная — пластинка-фольга CR-39 находилась в вакуумном объеме, откаченном до  $10^{-4}$  торр, вместе с первой. Эта конструкция (вакуумная камера и две пластинки-фольги CR-39) была выдержана в таких условиях три месяца, а затем вскрыта. Оба образца пластинок-фольг CR-39 в тех же условиях, что и в первом описанном случае, были протравлены одновременно и далее исследованы в оптическом со специальной приставкой и в сканирующем микроскопах.

Представим коротко полученные при этом результаты.

На рис. 21 приведены характерные ямки (конические лунки) после травления латентных треков от  $\alpha$ -частиц.

Как видно, после отжига при температуре  $180^\circ\text{C}$ , а также после травления образовались два типа лунок: мелкие с малым диаметром от  $\alpha$ -частиц радона (частично отожженных) и более глубокие с большим диаметром от  $\alpha$ -частиц  ${}^{231}\text{Pa}$ .

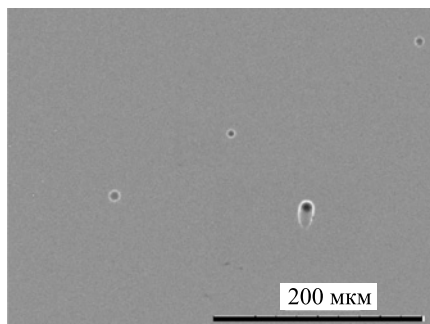


Рис. 21. РЭМ-изображения конических лунок после травления латентных треков от  $\alpha$ -частиц: три протравленных лунки с малым диаметром и одна с большим диаметром — примерно 10 мкм

Обработка РЭМ-изображений по малым (скорее всего, фон) и по более крупным лункам («эффект») в целом дала приблизительно схожие результаты с данными в [14] и [15].

Следует отметить, что в целом плотность треков на площади РЭМ-изображения относительно мала, внешние диаметры лунок также относительно небольшие:  $\sim 10\text{--}15$  мкм, поэтому видимых лунок мало, что снижает точность измерений. Травление же лунок до больших диаметров приводит к протравливанию естественных дефектов самого трекового детектора CR-39.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Вначале остановимся на результатах РЭМ- и РМЗА-исследований (см. «Введение»).

На поверхности входного окна (рис. 1, поз. 4), реакционной камеры (рис. 1, поз. 8), палладиевого стержня (рис. 1, поз. 9) и сборника продуктов реакций (рис. 1, поз. 12) обнаружен свинец в количестве  $N_{\text{Pb}} < 9,42 \cdot 10^{19}$  атомов Pb. Концентрация свинца в отдельных структурах достигает 59,22 вес. % (табл. 3), 58,39 вес. % (табл. 4) и 46,33 вес. % (табл. 5). Тем не менее (см. [1–4]) следует отметить, что распределение свинца по внутренним поверхностям ДНРС весьма неоднородно, где-то имеются покрытия из относительно мелких частиц свинца (рис. 7), а местами встречаются и более крупные частицы (см., например, рис. 5 и 6). РЭМ- и РМЗА-исследования позволили установить, что в суммарном спектре свинца присутствуют выделенные рентгеновские линии от протактиния (см. рис. 4, линии с энергиями более 16 кэВ).

Выделим основные результаты ВИМС/SIMS-анализа.

Установлен масс-изотопный состав свинца (см. табл. 6), который несколько отличается от природного и использованного эталонного образцов.

Свинец имеет два состояния окисления —  $\text{Pb}^{\text{II}}$ ,  $\text{Pb}^{\text{IV}}$ , поэтому образует два оксида  $\text{PbO}$  и  $\text{PbO}_2$  с массами 220, 222, 223, 224 а.е.м. и 236, 238, 239, 240 а.е.м. соответственно. При этом в SIMS видны массы 220, 222, 223 и 224 а.е.м., но не зарегистрированы массы 236, 238, 239 и 240 а.е.м. (см. рис. 14).

Отметим, что протактиний относится к третьей группе таблицы Менделеева и имеет состояния окисления  $\text{Pa}^{\text{III}}$ ,  $\text{Pa}^{\text{IV}}$  и  $\text{Pa}^{\text{V}}$  [24], поэтому образует соединения типа  $\text{PaI}_3$  и высшие оксиды  $\text{Pa}_2\text{O}_5$  или  $\text{PaO}_2$  с молекулярными массами 612, 542 или 263 а.е.м. соответственно, а не измеренную ВИМС/SIMS массу 246/247 а.е.м.

Отметим также, что кюрий имеет три состояния окисления —  $\text{Cm}^{\text{III}}$ ,  $\text{Cm}^{\text{IV}}$  и  $\text{Cm}^{\text{V}}$  с оксидами  $\text{CmO}$ ,  $\text{Cm}_2\text{O}_3$  и  $\text{CmO}_2$  [24], что соответствует массам 262, 540 и 278 а.е.м. В принципе такие массы можно было бы поискать в массовом спектре, но так как не видно высших оксидов свинца, здесь тоже ничего не увидеть.

Кратко повторим выводы разд. 3 статьи.

Из табл. 8, рис. 17 и выражения (23), а также результатов, полученных примерно через 18 мес после проведенных измерений и представленных в табл. 9, рис. 18 и выражении (24), можно *однозначно заключить, что в свинце, покрывающем поверхность реакционной камеры, присутствует протактиний.*

Из результатов по измерению  $\alpha$ -частиц от  $^{246}_{96}\text{Cm}$  (табл. 9, рис. 19 и выражение (26)) также можно говорить о присутствии этого искусственного элемента, но его концентрация значительно меньше, чем протактиния.

При регистрации  $\alpha$ -частиц от  $^{246}_{96}\text{Cm}$  их количество оказалось значительно меньше, чем от  $^{231}_{91}\text{Pa}$ , тем не менее число зарегистрированных

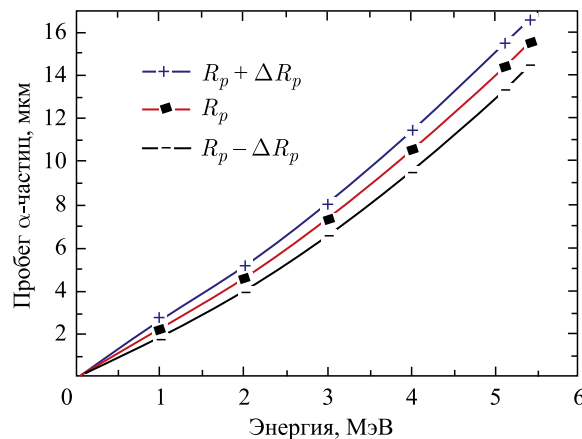


Рис. 22. Пробег  $\alpha$ -частиц в свинце  $R_p$  с энергиями от 1 до 5,4 МэВ

$\alpha$ -частиц с двух поверхностей разрезанной на две части реакционной камеры в диапазоне энергии  $\Delta E_{96}^{246}\text{Cm} = 5,1-5,4$  МэВ превышает значение фона, измеренного сразу после измерения «эффекта».

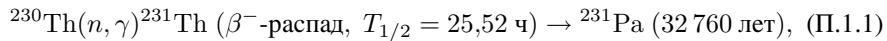
Отметим, что пробеги  $\alpha$ -частиц с энергиями от 1 до 5,4 МэВ в свинце с массовой плотностью  $\rho_{\text{Pb}} = 11,34$  г/см<sup>3</sup> и атомной плотностью  $n_{\text{Pb}} = 3,295 \cdot 10^{22}$  атомов/см<sup>3</sup> [8, 24]) по результатам расчетов с использованием компьютерной программы SRIM-2013 [25] приведены на рис. 22.

Из рисунка можно сделать вывод, что фактически при регистрации  $\alpha$ -частиц с энергиями 4,0–5,1 МэВ и 5,1–5,4 МэВ можно регистрировать только те  $\alpha$ -частицы, которые вылетают по направлению к  $\alpha$ -детектору перпендикулярно поверхности свинца, т. е. с глубины  $\sim 1-1,5$  мкм.

Обсуждение того, каким образом на внутренних поверхностях входного окна из бериллиевой бронзы (рис. 1, поз. 4), двух половинок реакционной камеры из латуни (рис. 1, поз. 8), палладиевого стержня (рис. 1, поз. 9), сборника продуктов ядерных и химических реакций из латуни (рис. 1, поз. 12) образовались элементы, будет приведено в приложениях I–III.

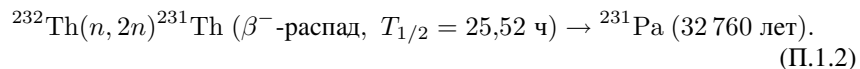
## ПРИЛОЖЕНИЕ I. РЕАКЦИИ ПОЛУЧЕНИЯ ПРОТАКТИНИЯ

Из природных источников, остатков от переработки урановой смолки, можно получить только <sup>231</sup>Pa [26]. Кроме того, <sup>231</sup>Pa возможно получать при облучении <sup>230</sup>Th ( $T_{1/2} = 7,538 \cdot 10^4$  лет) медленными нейтронами:

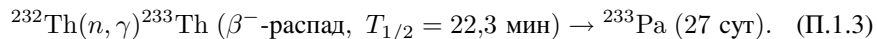


при этом сечение захвата теплового нейтрона ( $E_n = 0,0253$  эВ) изотопом тория <sup>230</sup>Th составляет  $\sigma_{(n, \gamma)} = 23,2$  б [8, 9].

Помимо реакции (П.1.1) при облучении <sup>232</sup>Th (100%,  $T_{1/2} = 1,405 \times 10^{10}$  лет) быстрыми нейтронами также можно получить <sup>231</sup>Pa:



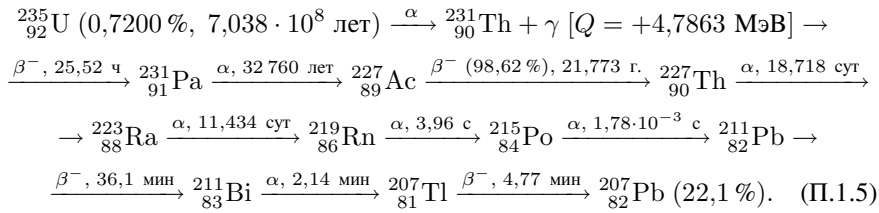
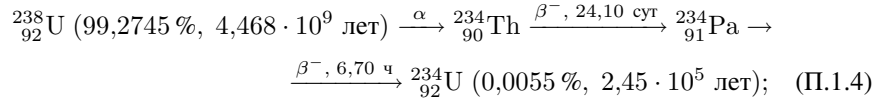
Изотоп <sup>233</sup>Pa также получают из тория, при этом сечение захвата теплового нейтрона ( $E_n = 0,0253$  эВ) изотопом тория <sup>232</sup>Th (100%) составляет  $\sigma_{(n, \gamma)} = 7,40$  б [8, 9]:



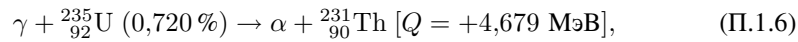
Радионуклиды протактиния входят в состав естественных радиоактивных рядов урана-235 и урана-238 (ядерные изомеры — <sup>234</sup>Pa,  $T_{1/2} = 6,70$  ч,



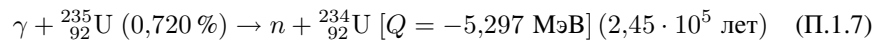
и менее устойчивый  $^{234m}\text{Pa}$ ):



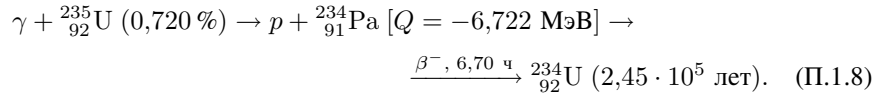
Можно написать еще реакцию типа



но эта реакция сильно подавлена по сравнению с реакциями



и



Отметим также, что в 1 т урана около 0,3 г протактиния-231. Содержание  $^{231}\text{Pa}$  в земной коре  $1 \cdot 10^{-10} \%$  по массе [26].

## ПРИЛОЖЕНИЕ II. ВОЗМОЖНЫЕ РЕАКЦИИ ПОЛУЧЕНИЯ ПРОТАКТИНИЯ

Как видно из табл. 1, в особо чистом палладии присутствуют следовые количества тяжелых элементов, а именно:  $^{77}\text{Ir}$  ( $< 10$  ppm),  $^{78}\text{Pt}$  ( $< 10$  ppm),  $^{79}\text{Au}$  (от 12 до 48 ppm),  $^{82}\text{Pb}$  ( $< 5$  ppm),  $^{83}\text{Bi}$  ( $< 5$  ppm) и Pd (больше 99,9910%). Невозможно ожидать, что часть этих тяжелых элементов при облучении тормозным излучением с максимальной энергией 10 МэВ палладия в атмосфере молекулярного дейтерия продиффундировала к поверхности и осела на внутренней поверхности реакционной камеры в виде свинцового покрытия с примерным количеством  $N_{\text{Pb}} < 9,42 \cdot 10^{19}$  атомов Pb. Другой материал, который был использован в ДНРС, — латунь — содержал определенные концентрации таких элементов, как цинк ( $\approx 40 \%$ ) и медь ( $\approx 60 \%$ ).

Можно оценить максимальное количество атомов свинца в Pd: атомная плотность Pd —  $n_{\text{Pd}} = 6,809 \cdot 10^{22}$  атомов/см<sup>3</sup>, исходная масса Pd-стержня —  $m_{\text{Pd}} = 0,7509$  г при плотности  $\rho_{\text{Pd}} = 12,02$  г/см<sup>3</sup>, — тогда полное число атомов свинца в Pd-стержне

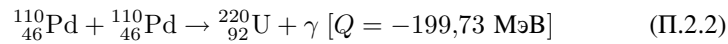
$$N_{\text{Pb}}^{\text{полное}} < n_{\text{Pd}} \frac{m_{\text{Pd}}}{\rho_{\text{Pd}}} \cdot 5 \cdot 10^{-6} = 2,1 \cdot 10^{16} \text{ атомов Pb/см}^3, \quad (\text{П.2.1})$$

что более чем на три порядка меньше оценочного количества свинца  $N_{\text{Pb}}$ .

Обычно во всех веществах, в том числе в палладии и латуни, присутствуют так называемые «следовые» количества урана (см., например, [27, 28]):  $^{238}_{92}\text{U}$  (99,2745 %),  $^{235}_{92}\text{U}$  (0,7200 %) и  $^{234}_{92}\text{U}$  (0,0055 %) с периодами полураспада  $T_{1/2} = 4,46 \cdot 10^9$  лет,  $T_{1/2} = 7,04 \cdot 10^8$  лет и  $T_{1/2} = 4,45 \cdot 10^5$  лет [8] соответственно. Это рассмотрено в реакциях (П.1.6)–(П.1.8) приложения I.

Как известно [8, 9, 24], Pd имеет шесть изотопов:  $^{102}_{46}\text{Pd}$  (1,02 %),  $^{104}_{46}\text{Pd}$  (11,14 %),  $^{105}_{46}\text{Pd}$  (22,33 %),  $^{106}_{46}\text{Pd}$  (27,33 %),  $^{108}_{46}\text{Pd}$  (26,46 %) и  $^{110}_{46}\text{Pd}$  (11,72 %).

Даже если рассмотреть гипотетическую реакцию подбарьерного слияния самого тяжелого изотопа палладия с таким же тяжелым ядром с огромной эндотермической энергией реакции



с временем жизни составного ядра урана  $T_{1/2} = 60$  нс [9], то получается короткоживущее ядро с нехваткой 11 нуклонов для  $\beta^-$ -перехода в ядро  $^{231}_{91}\text{Pa}$ .

В обзорной статье [29] приведены результаты по синтезу элементов, в том числе тяжелых, в чистых газах: водороде, дейтерии и гелии.

В работах [30, 31] обсуждается элементный состав микрочастиц и микрообъектов, образовавшихся в плотном водороде (1,1 кбар) при облучении тормозными  $\gamma$ -квантами в ННРС, в приложениях I и II к [30] представлены реакции синтеза, в [32] рассмотрены эффекты в ННРС с давлением водорода 3,4 кбар без металлического образца внутри.

В [5, 6, 33] приведены результаты по синтезу элементов в ННРС с палладиевым стержнем внутри при давлении водорода 0,5 кбар.

В работе [34] изучено образование микрообъектов и элементов в ННРС при давлении 2,5 кбар молекулярного водорода с палладиевым стержнем внутри, а в [35, 36] — с оловянным стержнем в водороде при давлении 3,5 кбар.

В работе [37] изучены процессы образования элементов и структур в ДНРС с дейтерием при давлении 2,2 кбар. А ссылки на работы по облучению металлов в атмосфере плотного дейтерия можно найти в [1–6, 29–37].

В серии исследований изучены процессы образования углерода и других элементов с синтезом структур в плотном гелии (1,1 кбар, [38–40] и

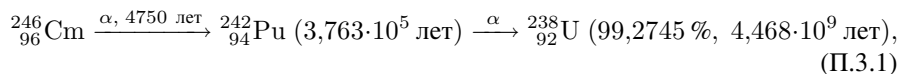
3,05 кбар, [41]) без металлического образца внутри и с палладиевым стержнем в плотном гелии (2,4 кбар, [42–43]).

В работах [44, 45] исследованы ядерные реакции с синтезом объектов и элементов в плотном ксеноне (270 атм) при облучении тормозным излучением с пороговой энергией 10 МэВ.

Во всех работах были сделаны попытки как-то объяснить обнаруженные эффекты на основе: фоторасщепления дейтрона [46, 7, 23]; подбарьерного слияния ядер [47]; модели Оппенгеймера [48] — передача нейтрона от дейтрона ядру; асимметричного деления ядер средних масс в капельной модели ядра [49–51]; явления внутренней твердотельной конверсии при снятии энергии возбуждения составного ядра [52, 53]; кластеризации в ядрах [54].

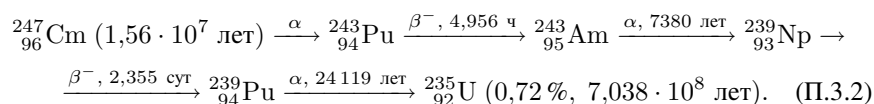
**ПРИЛОЖЕНИЕ III.**  
**РЕАКЦИИ ПОЛУЧЕНИЯ КЮРИЯ**  
 $^{246}_{96}\text{Cm}$  (4730 ЛЕТ) и  $^{247}_{96}\text{Cm}$  ( $1,56 \cdot 10^7$  ЛЕТ)

$\alpha$ -частицы от распада кюрия  $^{246}_{96}\text{Cm}$  имеют энергии 5,39 и 5,34 МэВ [8, 9, 24]:

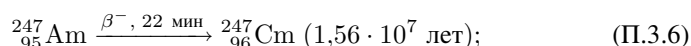
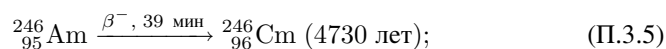
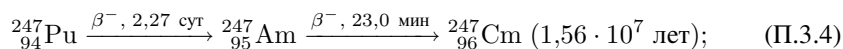
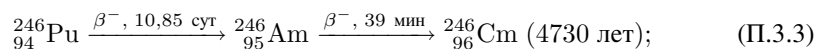


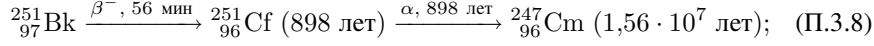
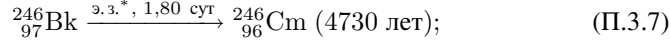
а  $\alpha$ -частицы от распада плутония имеют энергии 4,90 и 4,86 МэВ.

$\alpha$ -частицы от распада кюрия  $^{247}_{96}\text{Cm}$  имеют энергии 5,27 и 4,87 МэВ, а само ядро живет достаточно долго:

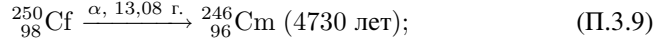


Следует также отметить, что все близкие по массам нуклиды испытывают радиоактивные превращения именно в  $^{246}_{96}\text{Cm}$ :

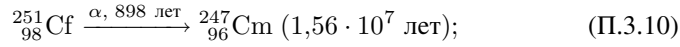




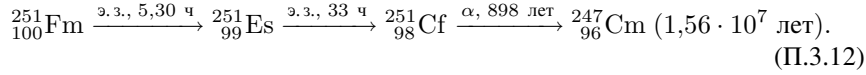
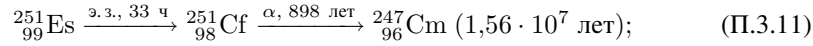
$\alpha$ -частицы от распада калифорния  ${}_{96}^{251}\text{Cf}$  (898 лет) с энергиями 5,85 и 5,67 МэВ:



$\alpha$ -частицы от распада калифорния  ${}_{98}^{250}\text{Cf}$  с энергиями 6,03 и 5,99 МэВ:

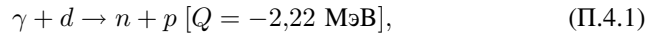


$\alpha$ -частицы от распада калифорния  ${}_{98}^{251}\text{Cf}$  с энергиями 5,85 и 5,67 МэВ:



#### ПРИЛОЖЕНИЕ IV. ОБЩИЕ ВЫВОДЫ

Рассмотрим процессы взаимодействия  $\gamma$ -квантов с энергиями больше, чем энергия связи дейтрона  $W = 2,22 \text{ МэВ}$  [23, 46]:



тогда  $n$  и  $p$  имеют примерно равные энергии:

$$E_{n,p} \cong 0,5[E_\gamma - W]. \quad (\text{П.4.2})$$

Процессы взаимодействия таких нейтронов и протонов с ядрами ДНРС (химическими элементами, входящими в материалы стенок входного окна (рис. 1, поз. 4), латунной реакционной камеры (рис. 1, поз. 8), Рд-стержня (рис. 1, поз. 9) и латунного сборника (рис. 1, поз. 12)) подробно рассчитаны для двух энергий  $\gamma$ -квантов ( $\approx 10$  и  $25 \text{ МэВ}$ ) вместе с  $\gamma$ -спектрами, энергетическими спектрами нейтронов и протонов из реакции (П.4.1), а также полными выходами нейтронов и протонов в [23].

При этом при упругом рассеянии  $\gamma$ -квантов на дейтронах, молекулярном дейтерии и ядрах Рд максимальные переданные им энергии  $E_{\text{max}}$  определяются из соотношения [30, 34, 35, 39, 61, 62]

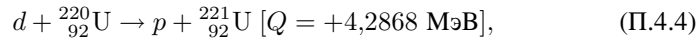
$$E_{\text{max}} = E_\gamma [1 + Mc^2 / (2E_\gamma)]^{-1}, \quad (\text{П.4.3})$$

тогда  $E_{\text{max}}^d = 105 \text{ кэВ}$ ,  $E_{\text{max}}^{\text{D}_2} = 53 \text{ кэВ}$  и  $E_{\text{max}}^{\text{Pd}} = 0,097 \text{ кэВ}$ .

---

\*э.з. — электрозахват.

Рассмотрим реакцию типа реакции Оппенгеймера [48]. Имеются в виду реакции с поляризацией рассеянных дейтронов в кулоновском поле ядер при относительно низких энергиях как источник нейтронов для составных ядер с относительно большими временами жизни, т. е. реакция  ${}_{Z}^{N+Z}A(d, p)_{Z+1}^{N+Z+1}A$ , например, с гипотетическим ядром  ${}_{92}^{220}\text{U}$  (см. реакцию (П.2.2)) с временем жизни  $T_{1/2} = 60$  нс [9]:



где  ${}_{92}^{221}\text{U}$  имеет время жизни  $T_{1/2} = 0,7$  мкс [9]. При этом энергии протона и ядра составят:

$$E_p = Q \cdot M_{{}_{92}^{221}\text{U}} / [M_{{}_{92}^{221}\text{U}} + M_p] \cong 4,267 \text{ МэВ}; \quad (\text{П.4.5})$$

$$E_{{}_{92}^{221}\text{U}} = Q \cdot M_p / [M_{{}_{92}^{221}\text{U}} + M_p] \cong 19 \text{ кэВ}. \quad (\text{П.4.6})$$

Как видно из гипотетической реакции (П.4.4), образуются протоны с большой энергией, способные нагревать дейтроны, которые сами могут участвовать в ядерных реакциях (см. [23]). Но каждое последующее поглощение нейтрона приводит к необходимости умножения вероятности предыдущей реакции на вероятность реакции типа реакции Оппенгеймера [48] с вытекающими отсюда последствиями.

Из приложений II и III можно заключить, что ядра  ${}_{91}^{231}\text{Pa}$ , которые, несомненно, присутствуют в приповерхностном слое свинца, покрывающего обе половинки реакционной камеры ( $N_{91}^{(2)} > [5,50 \pm 2,13] \cdot 10^8$  атомов Pa и  $N_{91}^{(1)} > (9,57 \pm 1,85) \cdot 10^8$  атомов Pa), и, возможно, присутствующие ядра  ${}_{96}^{246}\text{Cm}$  ( $N_{96}^{(3)} > 1,62 \cdot 10^7$  атомов Cm) можно объяснить либо реакциями, приведенными в приложении I, но только для  ${}_{91}^{231}\text{Pa}$ , либо реакциями в астрофизике (см. [55–60]).

## ЛИТЕРАТУРА

1. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R.* Nuclear Reactions in Deuterium-Saturated Palladium under Irradiation by 10 MeV  $\gamma$ -Quanta in Dense Molecular Deuterium at 1.2 kbar Pressure // *Eur. Phys. Lett.* 2013. V. 103. 42002. P. 1–6.
2. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R., Wilczynska-Kitowska T.* Changes of Surface Structure and Elemental Composition of Pd Rod and Collector of Nuclear Reaction Products Irradiated with 10-MeV  $\gamma$ -Quanta in Dense Deuterium Gas // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2013. V. 10, No. 7. P. 804–819; Препринт ОИЯИ Р15-2013-15. Дубна, 2013.
3. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R., Wilczynska-Kitowska T.* Changes of Surface Structure and Elemental Composition of Components of Deuterium High-Pressure Chamber with Pd Rod Inside Irradiated with 10-MeV  $\gamma$ -Quanta in Dense Deuterium Gas // *Phys. Part.*

- Nucl. Lett. 2013. V. 10, No. 7. P. 820–832; Препринт ОИЯИ Р15-2013-20. Дубна, 2013.
4. *Didyk A. Yu. et al.* Changes in the Chemical Composition of Nuclear Reaction Products Irradiated with 10 MeV  $\gamma$  Quanta in Deuterium Saturated Palladium // *J. Surf. Invest. X-Ray, Synchrotron and Neutron Techniques*. 2014. V. 8, No. 6. P. 1100–1112.
  5. *Дидык А. Ю., Вишневецкий Р.* Синтез новых структур на поверхности Pd-стержня и элементов ННРС и их химический состав при ядерных реакциях под действием тормозных  $\gamma$ -квантов с пороговой энергией 10 МэВ в молекулярном водороде при давлении 0,5 кбар. Препринт ОИЯИ Р15-2014-6. Дубна, 2014; Письма в ЭЧАЯ. 2015. Т. 12, №4(195). С. 935–956.
  6. *Дидык А. Ю., Вишневецкий Р.* Химический состав и структура синтезированных частиц на поверхности ННРС при ядерных реакциях при облучении тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ в молекулярном водороде при давлении 0,5 кбар. Препринт ОИЯИ Р15-2014-7. Дубна, 2014.
  7. *Didyk A. Yu., Wiśniewski R.* Properties of Hydrogen and Its Isotopes under High Pressure and Technological Applications. Dubna: JINR, 2013. 320 p.
  8. *Голашвили Т. В., Чечев В. П., Бадиков С. А.* Справочник нуклидов. М.: Издательский дом МЭИ, 2011. 461 с.
  9. *Физические величины: Справочник / Под ред. Григорьева И. С., Мейлихова Е. З.* М.: Энергоатомиздат, 1991. 1234 с.
  10. *Konarski P., Mierzejewska A.*  $B_4C/Mo/Si$  and  $Ta_2O_5/Ta$  Nanostructures Analysed by Ultra-Low Energy Argon Ion Beams // *Appl. Surf. Sci.* 2003. V. 203. P. 354–358.
  11. *Konarski P. et al.* Quadrupole-Based Glow Discharge Mass Spectrometer: Design and Results Compared to Secondary Ion Mass Spectrometry Analyses // *Vacuum*. 2007. V. 81, No. 10. P. 1323–1327.
  12. *Amadelli R. et al.* Ion Bombardment of  $PbO_2$  Films: Water Influence of Cluster Production // *Intern. J. Mass Spectrometry*. 1998. V. 179. P. 309–317.
  13. *Petersson J., Whitehouse M. J., Eliasson T.* Ion Microprobe U–Pb Dating of Hydrothermal Xenotime from an Episyenite: Evidence for Rift-Related Reactivation // *Chem. Geology*. 2001. V. 175, No. 3. P. 703–712.
  14. *Shuhmacher M. et al.* *In Situ* U/Pb Dating of Zircon with the CAMECA ims 1270 // *Secondary Ion Mass Spectrometry. SIMS IX*. Wiley, Chichester, 1994. P. 919–922.
  15. *Ranebo Y. et al.* Improved Isotopic SIMS Measurements of Uranium Particles for Nuclear Safeguard Purposes // *J. Anal. At. Spectrom.* 2009. V. 24. P. 277–287.
  16. *Василенко О. И. и др.* Радиация. М.: Изд-во Моск. ун-та, 1996.
  17. *Sinenian N. et al.* The Response of CR-39 Nuclear Track Detector to 1–9 MeV Protons. Preprint PSFC/JA-11-46, March, 2012. Plasma Science and Fusion Center, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, USA.
  18. *Гангровский Ю. П., Марков Б. Н., Перельгин В. П.* Регистрация и спектрометрия осколков деления. М.: Энергоатомиздат, 1992. 312 с.
  19. *Горбачев С. Г.* Применение твердотельных трековых детекторов для измерения содержания сверхмалых количеств альфа-излучателей // *Радиационная гигиена*. 2009. Т. 2, №2. С. 53–56.

20. Hudson D.J. Statistics. Lectures on Elementary Statistics and Probability. Geneva, 1964. 296 p.
21. Leo W.R. Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments. Berlin: Springer, 2012. 365 p.
22. Мэтьюз Дж., Уокер Р. Математические методы физики. М.: Атомиздат, 1972. 400 с.
23. Didyk A. Yu., Wiśniewski R. Phenomenological Nuclear-Reaction Description in Deuterium-Saturated Palladium and Synthesized Structure in Dense Deuterium Gas under  $\gamma$ -Quanta Irradiation // Phys. Part. Nucl. Lett. 2013. V. 10, No. 3(180). P. 437–457; JINR Preprint E15-2012-35. Dubna, 2012.
24. Emsley J. The Elements. Oxford: Clarendon Press, 1991. 161 p.
25. [www.srim.org/SRIM/SRIMLEGL.htm](http://www.srim.org/SRIM/SRIMLEGL.htm)
26. <https://ru.wikipedia.org/wiki/Протактиний>
27. Маслов О.Д. и др. Применение наноструктурного материала для разделения  $^{238}\text{U}$  и  $^{237}\text{U}$ , получаемого в фотоядерной реакции  $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$  // Радиохимия. 2010. Т. 52, № 1. С. 76–78; Radiochemistry. 2010. V. 52, No. 1. P. 87–89.
28. Маслов О.Д. и др. Применение наноструктурированной двуокиси марганца типа криptomелана для получения препарата по реакции  $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$  // Электронный научный журнал «Молекулярные технологии». Доклады Научной региональной конференции с международным участием «Химия-2010. Нанохимия» (3–4 июня 2010 г., Дубна). <http://www.niira.ru/journal/articles/4.1-1.pdf>.
29. Дидык А.Ю. Ядерные реакции синтеза и деления химических элементов и образование новых структур в плотных газах  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$  и  $\text{He}$  при облучении 10-МэВ  $\gamma$ -квантами // Физика и химия обработки материалов. 2015. № 2. С. 5–19.
30. Didyk A. Yu., Wiśniewski R. Synthesis of Microobjects in 1.1 kbar Hydrogen Induced by 10 MeV Bremsstrahlung  $\gamma$  Quanta on Inner Surfaces of Components of a High Pressure Chamber (Part 1) // Phys. Part. Nucl. Lett. 2015. V. 12, No. 1. P. 125–144.
31. Didyk A. Yu., Wiśniewski R. Synthesis of Microparticles in 1.1 kbar Hydrogen Induced by 10 MeV Bremsstrahlung  $\gamma$  Quanta in a Reaction Chamber (Part 2) // Phys. Part. Nucl. Lett. 2015. V. 12, No. 1. P. 145–165.
32. Дидык А.Ю., Вишневецкий П. Синтез новых структур, образованных в результате ядерных реакций в ННРС с давлением водорода 3,4 кбар, при облучении тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ P15-2015-79. Дубна, 2015.
33. Didyk A. Yu., Wiśniewski R. Synthesis of New Structures on the Surface of Pd Rod and ННРС Elements and Their Chemical Composition in Nuclear Reactions Induced by Bremsstrahlung  $\gamma$  Quanta with Threshold Energy of 10 MeV in Molecular Hydrogen at a Pressure of 0.5 kbar // Phys. Part. Nucl. Lett. 2015. V. 12, No. 4. P. 603–617.
34. 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. 2014. V. 11, No. 4. P. 513–527.

35. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Ядерные реакции с синтезом микрочастиц в водороде при давлении 3,5 кбар в присутствии олова при облучении тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-89. Дубна, 2014.
36. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Ядерные реакции с синтезом микрочастиц в ННРС с цилиндром из олова при давлении 3,5 кбар водорода под действием облучения тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-88. Дубна, 2014.
37. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Аномалии на внутренних поверхностях камеры высокого давления дейтерия ДНРС (2,2 кбар) с образованием микрочастиц сложного состава. Препринт ОИЯИ Р15-2015-87. Дубна, 2015.
38. Didyk A. Yu., Wiśniewski R., Wilczynska-Kitowska T. The Carbon-Based Structures Synthesized through Nuclear Reactions in Helium at 1.1 kbar Pressure under Irradiation with Braking  $\gamma$ -Rays of 10 MeV Threshold Energy // Eur. Phys. Lett. 2015. V. 109. 22001. P. 1–6.
39. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Свойства структур на основе углерода, синтезированных в ядерных реакциях в гелии при давлении 1,1 кбар под действием облучения тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-38. Дубна, 2014.
40. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Ядерные реакции, синтез химических элементов и новых структур в плотном гелии при давлении 1,1 кбар под действием облучения тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-50. Дубна, 2014.
41. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р. Синтез новых структур и образование химических элементов в плотном гелии при давлении 3,05 кбар при облучении тормозными  $\gamma$ -квантами с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-87. Дубна, 2014.
42. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р., Семин В. А. Синтез микрочастиц в гелии при давлении 2,4 кбар с палладиевым стержнем внутри ННРС, облученной тормозными  $\gamma$ -квантами с максимальной энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2015-33. Дубна, 2015.
43. Дидык А. Ю., Вишневецкий Р., Семин В. А. Исследование процессов образования новых структур и элементов в ННРС с палладиевым стержнем внутри при давлении 2,4 кбар в результате воздействия тормозных  $\gamma$ -квантов с максимальной энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2015-34. Дубна, 2015.
44. Дидык А. Ю., Гульбекян Г. Г., Мышинский Г. В. РЭМ- и РМЗА-исследования синтезированных частиц при облучении плотного ксенона (270 атм) тормозными  $\gamma$ -квантами с максимальной энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2015-71. Дубна, 2015.
45. Дидык А. Ю., Гульбекян Г. Г., Мышинский Г. В. Исследование изменений элементного состава и структуры поверхностей при облучении плотного ксенона (270 атм) тормозными  $\gamma$ -квантами с максимальной энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2015-72. Дубна, 2015.



46. *Bethe G., Morisson Ф.* Элементарная теория ядра. М.: Изд-во иностр. лит., 1958. 256 с.
47. *Gamov G.* Nuclear Energy Sources and Stellar Evolution // *Phys. Rev.* 1938. V. 53. P. 395–604.
48. *Oppenheimer J.R., Phillips M.* Note for the Transmission Functions for Deuteron // *Phys. Rev.* 1935. V. 48, No. 15. P. 500–502.
49. *Moretto Luciano G.* Statistical Emission of Large Fragments: A General Theoretical Approach // *Nucl. Phys. A.* 1975. V. 247. P. 211–230.
50. *Sierk A.J.* Mass-Asymmetric Fission of Light Nuclei // *Phys. Rev.* 1985. V. 55, No. 6. P. 582–583.
51. *Sierk A.J.* Macroscopic Model of Rotating Nuclei // *Phys. Rev. C.* 1986. V. 33, No. 6. P. 2039–2052.
52. *Kálmán P., Keszthelyi T.* Solid State Internal Conversion // *Phys. Rev. C.* 2004. V. 69. 031606(R). P. 1–3.
53. *Kálmán P., Keszthelyi T.* Lattice Effect in Solid State Internal Conversion // *Phys. Rev. C.* 2009. V. 79. 031602(R). P. 1–4.
54. *Freer M.* The Clustered Nucleus–Cluster Structures in Stable and Unstable Nuclei // *Rep. Prog. Phys.* 2007. V. 70. P. 2149–2210.
55. *Ишханов Б. С., Капитонов И. М., Тутынь И. А.* Нуклеосинтез во Вселенной. М.: Либроком, 2009; <http://nuclphysinpmsuru/nuclsynthtml>.
56. *Мухин К. Н.* Экспериментальная ядерная физика. Т. 1: Физика атомного ядра. М.: Энергоатомиздат, 1983. 616 с.
57. *Bethe H.A.* Energy Production in Stars // *Phys. Rev.* 1939. V. 55. P. 434–456.
58. *Marshak R.E., Morse P.M., York H.* Equation of State of Hydrogen, Helium, and Russel Mixture at High Temperatures and Pressures // *Astrophys. J.* 1950. V. 111. P. 214–220.
59. <https://ru.wikipedia.org/wiki/R-процесс>
60. *Пенионжквич Ю. Э.* Экзотические ядра в астрофизике // *ЭЧАЯ.* 2012. Т. 43, вып. 4. С. 876–915.
61. *Дидык А. Ю. и др.* Синтез микрочастиц в плотном водороде при давлении 3,5 кбар с оловянным стержнем под действием тормозных  $\gamma$ -квантов с пороговой энергией 10 МэВ. Препринт ОИЯИ Р15-2014-104. Дубна, 2015.
62. *Углов В. В.* Радиационные эффекты в твердых телах. Минск: БГУ, 2011. 207 с.

Получено 26 августа 2015 г.

Редактор *А. И. Петровская*

Подписано в печать 18.03.2016.

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

Усл. печ. л. 2,7. Уч.-изд. л. 3,3. Тираж 225 экз. Заказ № 58781.

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

E-mail: [publish@jinr.ru](mailto:publish@jinr.ru)

[www.jinr.ru/publish/](http://www.jinr.ru/publish/)