

05;11;12

О возможности механостимулированной трансмутации ядер углерода в ультрадисперсных дейтерийсодержащих средах

© А.Г. Липсон, В.А. Кузнецов, Т.С. Иванова, Е.И. Саунин, С.И. Ушаков

Институт физической химии РАН,
117915 Москва, Россия

(Поступило в Редакцию 10 января 1996 г.)

С помощью методов радиоуглеродного β -спектрального анализа исследовано изменение концентрации C^{14} в графите, подвергнутом вибродиспергированию в присутствии тяжелой (легкой) воды. Обнаружено, что для системы $C + D_2O$ наблюдается статистически значимое увеличение скорости β -счета по сравнению с системой $C + H_2O$, диспергированной в аналогичных условиях. Предложена количественная модель трансмутации изотопа C^{13} в изотоп C^{14} при взаимодействии многофононных возбуждений с дейтеронами в кристаллической решетке графита в присутствии фоновых тепловых нейтронов.

Введение

Ранее [1–3] нами было показано, что при достижении кристаллическими частицами достаточно малых размеров ($r_c \leq 10^{-5} - 10^{-4}$) в процессе импульсного механического нагружения поглощение упругой энергии в них приобретает квантовый характер. Это означает, что вся порция подводимой упругой энергии поглощается не равномерно каждым атомом частицы, а концентрируется в ее отдельных микрообластях в виде квантов электромагнитного поля [1]. Такой процесс становится возможным только в том случае, когда при взаимодействии потока упругой энергии с высокодисперсной кристаллической средой образуются "гигантские" флуктуации плотности упругой энергии. Возможность возникновения такого рода флуктуаций связана в общем случае с наличием широкого распределения диспергируемых частиц по размерам. При среднем размере агрегата порядка нескольких микрон в диспергируемом порошке всегда имеется некоторая малая фракция с размером частиц меньше 0.1 мк [4]. Поэтому, очевидно, что при подводе одинаковой порции упругой энергии ко всем диспергируемым частицам в этой малой доле порошка с радиусом на 1.5–2.0 порядка меньше среднего значения, сконцентрированная плотность упругой энергии может стать на 5–6 порядков выше средней. В случае так называемого "жесткого" концентрирования, когда величина плотности упругой энергии $E'_{упр}$ соизмерима с плотностью энергии оптических фононов в кристалле (с дебаевской частотой ω_D), согласно модели [1,2], при концентрировании в частице упругой энергии создается виртуальный электромагнитный сгусток, представляющий собой когерентное многофононное возбуждение (КМВ) и имеющий конечную плотность, соизмеримую с ядерной [2] (в случае "мягкого" концентрирования конечная плотность такого электромагнитного сгустка много меньше ядерной). Это обстоятельство дает основание полагать, что случай "жесткого" концентрирования упругой энергии соответствует концентрированию энергии КМВ на одном или нескольких нуклонах условного атомного ядра, находящегося в центре симметрии

дисперсной частицы. Как показано в [5,6], следствием когерентного концентрирования таких многофононных возбуждений на ядре в кристаллической решетке дисперсной частицы может явиться отщепление от него виртуального нейтрона. Этот процесс произойдет лишь в том случае, когда $W'_S > E_n$, т.е. когда энергия КМВ в расчете на один нуклон больше энергии связи нейтрона в ядре. В свою очередь испущенный ядром-донором нейтронов виртуальный нейтрон может быть перехвачен ядром-акцептором нейтронов, находящимся в поле действия ядерных сил. Если вблизи (на ядерных расстояниях) ядра-донора отсутствует ядро-акцептор, то виртуальный нейтрон фактически останется в ядре-доноре, поскольку время действия КМВ сопоставимо с ядерным временем ($\tau \sim 10^{-22}$ с). В работе [7] было высказано предположение, что в присутствии в решетке фоновых тепловых нейтронов процесс захвата виртуальных нейтронов ядрами-акцепторами может идти более интенсивно. При этом фоновый нейтрон играет роль катализатора реакции передачи виртуального нейтрона, т.е. материализует последний. Поэтому при наличии фона тепловых нейтронов расстояние между ядрами донорами и акцепторами нейтронов может быть гораздо больше ядерного и иметь порядок параметра решетки.

Поскольку типичные значения энергии КМВ в "жестких" кристаллах лежат в интервале 5–10 МэВ/нуклон [3], то в дейтерийсодержащих частицах образование виртуального нейтрона будет облегчено вследствие малости величины энергии связи дейтерона ($E_n = 2.22$ МэВ). Поэтому протекание ядерных трансмутаций (изменение изотопного состава кристаллической решетки) в таких системах при наличии потока упругой энергии и фона тепловых нейтронов наиболее вероятно.

В настоящей работе с целью проверки изложенных выше гипотез осуществлен эксперимент по механическому диспергированию кристаллического углерода (графита) в присутствии добавки D_2O . Полученные данные по изменению изотопного состава графита, как будет показано ниже, подтверждают возможность механотрансмутации углерода под действием "гигантских" флуктуаций плотности упругой энергии, приводящих к образованию в частицах графита КМВ.

Методика эксперимента

Выбор графита в качестве носителей ядер-акцепторов нейтронов обусловлен достаточной "жесткостью" этого объекта [3], приводящей к поглощению его частицами значительной доли упругой энергии из подведенной механической. Кроме того, углерод состоит из двух стабильных изотопов C^{12} и C^{13} и имеет только один долгоживущий β -активный нуклид C^{14} , изменение концентрации которого надежно отслеживается с помощью методов радиоуглеродного анализа.

Диспергирование графита (С) совместно с D_2O (H_2O) осуществляли в вибромельнице М-35 с энергонапряженностью 10 Вт/г, в барабанах из нержавеющей стали с помощью стальных шаров диаметром 6 мм (рис. 1). Для увеличения интенсивности механического воздействия барабаны охлаждались жидким азотом через каждые 3 мин помолы. С целью предотвращения выгорания графита барабаны заполнялись аргоном до атмосферного давления. В экспериментах использовался особо чистый реакторный графит марки ММПГ-8 с исходной удельной поверхностью $S_{уд} = 6.3 \text{ м}^2/\text{г}$. Для увеличения скорости диспергирования часть графита подвергалась вакуумному (10^{-4} Тор) отжигу при температуре 800°C . В качестве носителя дейтерия использовали тяжелую воду чистотой 99.9%, которую добавляли в барабан с графитом в количестве 5 мас %. При проведении контрольных экспериментов использовали аналогичную систему, в которой D_2O заменяли на H_2O (бидистиллят), а также индивидуальное диспергирование графита без добавок воды. Диспергирование систем $C + D_2O$ и $C + H_2O$ осуществлялось за фиксированные промежутки времени: в первой серии экспериментов 70 мин (отожженный графит), во второй серии — 160 мин.

Для контроля кинетики диспергирования частиц графита использовали метод определения удельной поверхности порошков S по низкотемпературной адсорбции азота (БЭТ) при различных временах помолы. С целью определения размеров кристаллитов и величины микроискажений, соответствующих точкам на кривой $S(\tau)$ (где τ — время диспергирования) применялись методы оценки средних размеров областей когерентного рассеяния (ОКР) рентгеновских лучей. Эти измерения проводились на установке ДРОН-3 (K_α Cu), на которой получали дебаеграммы образцов различной степени измельчения.

С целью предотвращения случайных процессов активации углерода нейтронами флуктуирующего во времени космического фона, а также увеличения числа фоновых нейтронов в графите и повышения воспроизводимости результатов по C^{14} фон тепловых нейтронов в рабочей зоне поддерживался постоянным и превышал среднее значение космического фона примерно в 9 раз. С этой целью во всех экспериментах на расстоянии 90 см от рабочего барабана вибромельницы размещался Cf^{252} источник нейтронов в полиэтиленовой защите (толщиной 2.5 см) интенсивностью 300 н/с в телесный угол 4π (рис. 1). Измерения с нейтронным детектором [8]

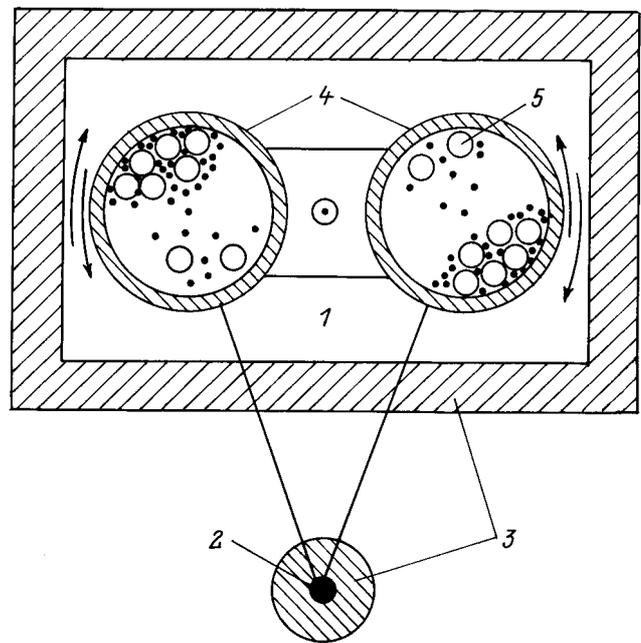


Рис. 1. Схема экспериментальной установки. 1 — вибромельница, 2 — источник нейтронов, 3 — замедлитель, 4 — стальные барабаны, 5 — шары.

показали, что в рабочей зоне вибромельницы абсолютная интенсивность фона тепловых нейтронов составила величину $i_0 \approx 5 \cdot 10^{-2} \text{ н/с} \cdot \text{см}^2$ (против значения $i_0 \sim 6 \cdot 10^{-3} \text{ н/с} \cdot \text{см}^2$ тепловых нейтронов, характерного для космического фона).

Для проведения радиоуглеродного анализа использовали сцинтилляционный β -спектрометр на базе спектрометрического детектора β -излучения (пластик), закрепленного на ФЭУ блока детектирования VAS-968. Сигнал с блока детектирования поступал на спектрометрический усилитель БУС2-47, а затем на многоканальный амплитудный анализатор импульсов ЧНО-1024-90. Чтобы уменьшить вклад высокоэнергетического β -излучения в мягкую область спектра использовали тонкий β -детектор SPF35V04 (производства фирмы Тесла) толщиной 700 мкм и диаметром 40 мм, практически прозрачный для β -частиц с энергией больше 600 кэВ. С целью уменьшения фона космических лучей блок детектирования размещался внутри свинцовой защиты толщиной 10 см. При измерении β -активности дисперсного графита использовали Al подложки диаметром 50 мм, на которые наносилась навеска порошка массой 0.1 г и толщиной 30 мкм. Подложка размещалась на расстоянии 2 мм от детектора. Для калибровки детектора использовали стандартные метрологические источники C^{14} , Tc^{99} и Tl^{204} (рис. 2, кривые 1, 3). Эффективность детектора по отношению к C^{14} с учетом калибровки составила 35% (для Tl^{204} — 73%). С целью повышения точности регистрации β -излучения от C^{14} счет этого радионуклида осуществлялся лишь в каналах с 21 по 60 (рис. 2, кривая 1). Одновременно для определения в образцах

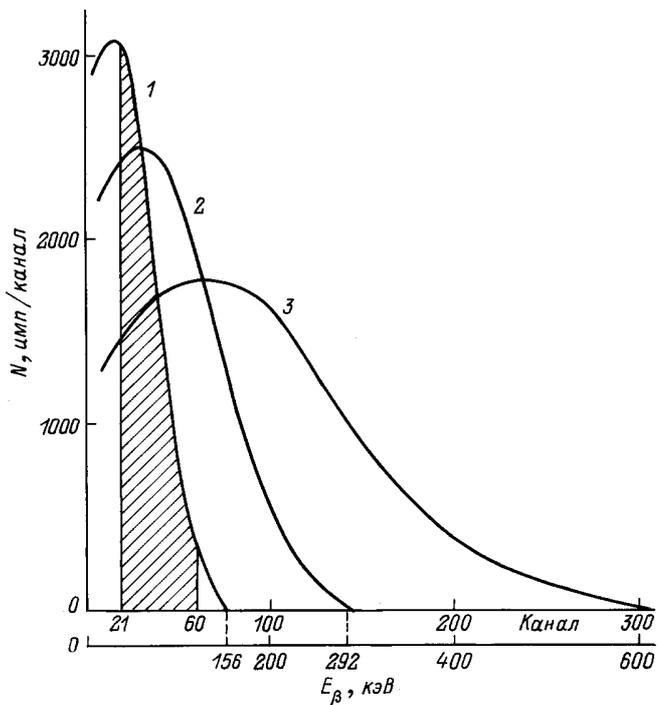


Рис. 2. Спектры β -излучения нуклидов, измеренные с помощью пластикового сцинтиллятора SPF35U04. Заштрихованная область кривой 1 соответствует регистрируемому β -счету по C^{14} .

следов высокоэнергетических β -нуклидов непрерывно контролировалась скорость счета в 61–250 каналах анализатора. Измерения β -счета графита чередовались с фоновыми измерениями (без графитовых навесок). Полученные значения нормировались на средние уровни фона, измеренного в дни работы с соответствующими графитовыми образцами.

Экспериментальные результаты

Кинетика диспергирования предварительно отожженного и неотожженного графита совместно с H_2O и D_2O представлена на рис. 3. Как видно из рисунка, предварительный отжиг приводит к резкому увеличению скорости диспергирования по сравнению с неотожженными образцами. При сухом помоле поверхность образца графита достигает величины $S_{уд} = 340 \text{ м}^2/\text{г}$ (рис. 3, кривая 1). Введение в систему воды уменьшает скорость диспергирования отожженных образцов, так что за время $\tau = 70$ мин на образцах $(C + H_2O)$ и $(C + D_2O)$ достигаются поверхности 95 и $75 \text{ м}^2/\text{г}$ соответственно (рис. 3, кривые 2, 3). На неотожженных образцах, диспергируемых с водой за 160 мин помол, значения S составляют лишь 42 и $59 \text{ м}^2/\text{г}$ (рис. 3, кривые 4, 5).

На рис. 4, а–в представлены зависимости средних значений размеров ОКР D , микронапряжений ε и ширины линий θ от величины S . Как видно из этих рисунков, в области значений $S \sim 100 \text{ м}^2/\text{г}$ на кривых $D(S)$, $\varepsilon(S)$ и

$\theta(S)$ наблюдается отчетливый перегиб, свидетельствующий об изменении характера разрушения частиц графита. Действительно, излом на кривой $\theta(S)$, связанный со значительным уширением рефлексов дебаеграмм, указывает на то, что при $S \geq 100 \text{ м}^2/\text{г}$ порошок графита оказывается сильно аморфизированным. Одновременно происходит резкое нарастание микроискажений ε и уменьшение размеров ОКР D . Это подтверждает вывод о том, что в силу аморфизации частиц графита поглощения упругой энергии в них не происходит, а имеет место пластическое течение, приводящее к "испарению" графита. Как следует из рис. 4, в, при времени диспергирования графита $\tau = 70$ мин в присутствии D_2O (H_2O) средняя ширина рефлексов, взятых по кристаллографическим направлениям $[002]$, $[004]$ и $[110]$ (так же как D и ε), не отличается от аналогичных параметров исходного порошка. В то же время (рис. 5) при увеличении времени диспергирования систем $C + H_2O$ (D_2O) выше 70 мин происходит резкое нарастание ширины линий, причем ширина линий образцов, диспергированных в течение $\tau = 160$ мин, превосходит почти в 3 раза значение θ для аналогичных образцов с $\tau = 70$ мин. Это указывает на тот факт, что после диспергирования в течение 70 мин графит еще проявляет кристаллические свойства, как и исходный (недиспергированный) порошок, тогда как при $\tau = 160$ мин происходит сильная его аморфизация. Поэтому флуктуационная квантовая модель разрушения частиц [1,2] (образования в них КМВ) применима в данном случае лишь к системам $C + D_2O$ (H_2O), диспергированным в течение времени $\tau = 70$ мин, и не может быть использована для порошков, диспергированных в течение 160 мин. Отметим, что в случае аморфизации

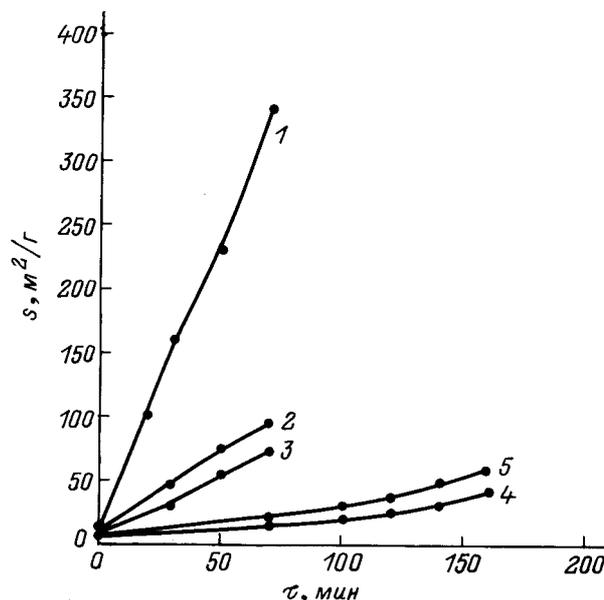


Рис. 3. Кинетика вибродиспергирования графита. 1 — отожженный графит без добавок, 2 — отожженный графит +5: H_2O , 3 — отожженный графит +5: D_2O , 4 — неотожженный графит +5: H_2O , 5 — неотожженный графит +5: D_2O .

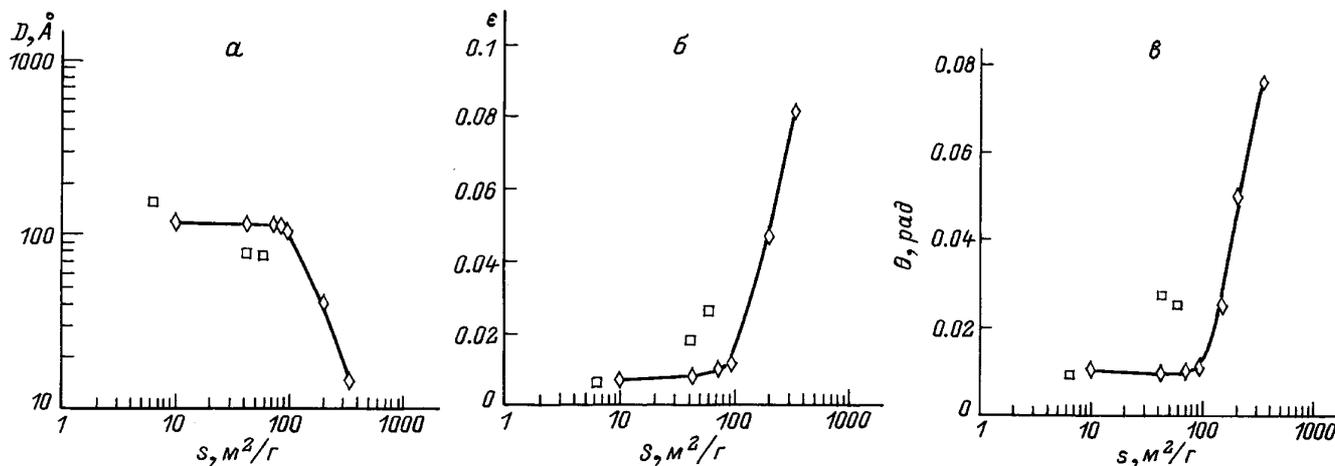


Рис. 4. Изменение размеров ОКР (а) величины микроискажений (б) и ширины линий (в) в зависимости от удельной поверхности порошков при $\tau = 70$ мин. Значки соответствуют размерам ОКР при $\tau = 160$ мин в зависимости от величины $S_{уд}$ для неотожженного графита, диспергируемого совместно с H_2O или D_2O .

частиц графита предельный минимальный размер не имеет смысла, и поэтому при $S > 100 \text{ м}^2/\text{г}$ (рис. 3, кривая 1) измельчение графита может быть осуществлено до сколь угодно малых размеров частиц. Эти данные свидетельствуют также о том, что область применения флуктуационной квантовой модели разрушения частиц графита соответствует $S < 100 \text{ м}^2/\text{г}$ при $\tau = 70$ мин, где они находятся преимущественно в кристаллическом, а не в аморфном состоянии.

Результаты измерений β -счета для различных образцов графита представлены в таблице. Как видно, для контрольных образцов исходного, индивидуально диспергированного графита, а также $C + H_2O$ при временах

диспергирования $\tau_1 = 70$ мин и $\tau_2 = 160$ мин скорость β -счета не превышает фоновых значений в пределах ошибки измерений во всей исследованной области β -спектра. В то же время для аналогичных образцов $C + D_2O$ получены статистически значимые превышения над фоном контрольных измерений с системой $C + H_2O$ в 21–60 каналах анализатора, соответствующих β -спектру C^{14} . В высокоэнергетических каналах (61–250) для образцов $C + D_2O$, диспергированных в течение $\tau_1 = 70$ мин, превышение над фоном контрольных экспериментов отсутствует, тогда как для образцов, диспергированных $\tau_2 = 160$ мин, небольшое превышение β -активности в сравнении с системой $C + H_2O$ имеет место. Таким образом, для систем $C + D_2O$, диспергированных в течение 70 и 160 мин, наблюдается статистически значимое увеличение скорости β -счета в энергетической области, отвечающей спектру C^{14} , по сравнению с системой $C + H_2O$, диспергированной в аналогичных условиях. Величины превышения над фоном контрольных экспериментов достигают соответственно 8 для $\tau_1 = 70$ мин и 17 для $\tau_2 = 160$ мин. При этом средняя скорость наработки C^{14} с учетом калибровки примерно одинакова в обоих случаях и составляет $\langle \dot{N}(C^{14}) \rangle = 2 \cdot 10^6 \text{ ат } C^{14} / \text{г} \cdot \text{с}$. Увеличение скорости β -счета в области энергий, соответствующей спектру C^{14} , в диспергированных образцах $C + D_2O$ по сравнению с аналогичными образцами $C + H_2O$ может иметь несколько причин.

1. Регистрация β -частиц, излучаемых тритием, содержащимся в D_2O , исключается тем фактором, что область детектирования β -частиц C^{14} лежит в интервале энергий $E > 43 \text{ кэВ}$, тогда как граничная энергия β -спектра $T^3 E_{\text{тр}} \approx 18 \text{ кэВ}$.

2. Влияние радиоактивности "намола", образующегося при истирании стальных шаров и барабана.

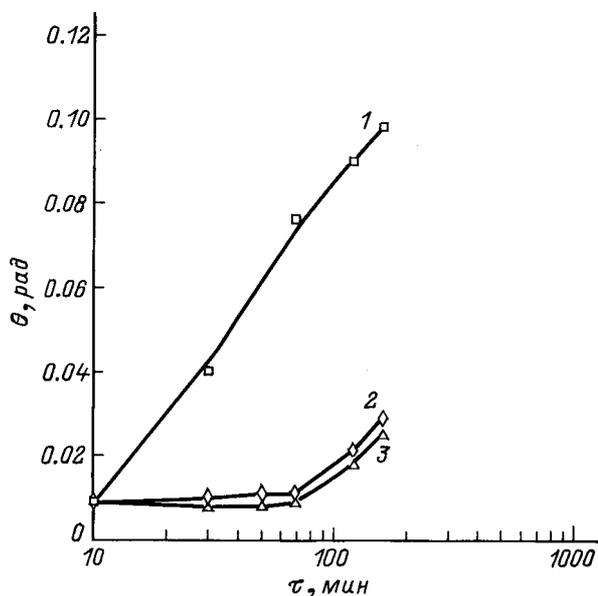


Рис. 5. Изменение ширины рентгеновских линий в зависимости от времени диспергирования. 1 — отожженный графит без добавок, 2 — $C + H_2O$, 3 — $C + D_2O$.

Параметры β -счета образцов графита, диспергированных в различных условиях

Номер образца	Образец	$S_{уд}$, м ² /г	$N \cdot 10^{-2}$, отсчет/с		$\Delta N \cdot 10^{-2}$, отсчет/с		$\Delta n(C^{14})$, Бк/г
			(21–60)	(61–250)	(21–60)	(61–250)	
1	Фон	—	7.00 ± 0.14	14.60 ± 0.31	—	—	—
2	С (исходный)	10	6.97 ± 0.14	14.55 ± 0.31	—	0.05 ± 0.47	—
3	С ($\tau = 70'$)	340	6.95 ± 0.14	14.60 ± 0.31	0.58 ± 0.21	0.00 ± 0.46	1.63 ± 0.44
4	С + H ₂ O ($\tau = 70'$)	95	7.00 ± 0.14	14.52 ± 0.31			
5	С + D ₂ O ($\tau = 70'$)	72	7.58 ± 0.15	14.52 ± 0.31	1.20 ± 0.23	1.00 ± 0.50	3.43 ± 0.45
6	С + H ₂ O ($\tau = 160'$)	42	7.05 ± 0.15	15.20 ± 0.33			
7	С + D ₂ O ($\tau = 160'$)	59	8.25 ± 0.17	16.21 ± 0.33			

П р и м е ч а н и е. $S_{уд}$ — удельная поверхность образца, N — скорости β -счета образцов 1–7 соответственно в (21–60) и (61–250) каналах; ΔN — разности между скоростями счета образцов 3 и 2, 5 и 4, 7 и 6; $\Delta n(C^{14})$ — активность наработанного радиоуглерода с учетом эффективности детектора.

а) Можно предположить, что углерод (в том числе и сконцентрированный в нем C^{14}), содержащийся в стали, переходит в измельчаемый продукт. Влияние этого фактора исключается, однако, тем, что масса намола по отношению к массе диспергируемого графита не превышает 0.1 мас %. С учетом содержания углерода в используемой стали количество перешедшего в измельчаемый продукт C^{14} не превышает 10^{-3} % от количества C^{14} , находящегося в исходной навеске графита, и не может внести измеримого вклада в β -активность образца.

б) Влияние адсорбированных сталью ”жестких” β -изотопов радиевых и ториевых рядов (рис. 2, кривые 2, 3), образовавшихся в результате радиоактивных загрязнений среды. В этом случае в β -спектрах продуктов измельчения в области энергий $E > 156$ кэВ должно наблюдаться превышение над фоном. При малых временах помолы ($\tau = 70$ мин) данного эффекта не зарегистрировано (см. таблицу). В то же время при $\tau = 160$ мин наблюдается некоторое увеличение счета в 61–250 каналах анализатора для систем С + D₂O и С + H₂O по сравнению с фоном. Поэтому теоретическая возможность перехода ”жестких” радионуклидов из стали в измельчаемый продукт при длительных механических воздействиях не исключается. Однако вклад от них в β -спектр радиоуглерода невелик, поскольку величина ΔN мала, а эффективность регистрации ”жестких” β -частиц более чем в два раза выше, чем β -излучения C^{14} . При этом максимум интенсивности таких радионуклидов сдвинут в область высоких энергий по сравнению со спектром C^{14} , следовательно, они не могут являться главной причиной увеличения β -счета в энергетическом интервале, отвечающем радиоуглероду.

3. Влияние химических изотопных эффектов. Предположим, что по каким-либо причинам в системе С + D₂O происходит преимущественное ”выгорание” основных (легких) изотопов C^{12} и C^{13} по сравнению с системой С + H₂O. В этом случае должна наблюдаться значительная потеря массы исходной загрузки графита (8–17%) для того, чтобы произошло концентрирование C^{14} . Этого однако не происходит, так как потери массы графита не превышают 0.3 %. Кроме того, хорошо известно, что влияние изотопных эффектов в твердофазных системах резко возрастает при увеличении удельной поверхности образцов. Поэтому образцы с большей удельной поверхностью должны были бы иметь большую концентрацию радиоуглерода, чего не наблюдается (см. таблицу). Согласно эксперименту концентрация C^{14} в образцах С + D₂O зависит только от времени диспергирования (дозы подведенной упругой энергии) и не зависит от величины $S_{уд}$.

Таким образом, накопление C^{14} в образцах графита при их диспергировании в присутствии D₂O и отсутствие такого эффекта в системе С + H₂O невозможно объяснить влиянием радиоактивных загрязнений, продуктов намола или химических изотопных эффектов. Поэтому следует предположить, что повышение концентрации радиоуглерода при диспергировании системы С + D₂O является следствием ядерных превращений (трансмутации) изотопа C^{13} в изотоп C^{14} при взаимодействии многофононных возбуждений с дейтеронами в кристаллической решетке графита в присутствии фоновых тепловых нейтронов [5,6].

Рассмотрим возможные причины наблюдаемого эффекта трансмутации изотопа C^{13} в C^{14} и их взаимосвязь с процессами концентрирования упругой энергии в дисперсных частицах графита.

Обсуждение результатов

Исходя из представленной модели, среднее количество актов трансмутации углерода ($C^{13} \rightarrow C^{14}$) в дисперсной частице графита в единицу времени $\dot{N}(C^{14})$ определится следующим соотношением:

$$\dot{N}(C^{14}) = N_S P_d P_{C^{13}} P_n, \quad (1)$$

где N_S — среднее число КМВ при диспергировании в единицу времени, для которых энергия $W_S > E_n$ (энергии связи нейтрона в дейтероне); P_d — вероятность взаимодействия КМВ с дейтерием в решетке графита; $P_{C^{13}}$ — вероятность нахождения атома C^{13} вблизи этого дейтерона; P_n — вероятность нахождения фонового нейтрона вблизи дейтерона или вероятность взаимодействия такого нейтрона с КМВ.

Вначале нам необходимо убедиться, что энергии КМВ в расчете на 1 нуклон (W'_S) будет достаточно для расщепления дейтерона, т.е. что $(W'_S) > 2.22$ МэВ. Для этого воспользуемся уравнением состояния вырожденного нейтронного газа [9], которое, как показано в [2], определяет максимальную плотность энергии КМВ

$$W'_S = \frac{3}{5} (3\pi^2)^{2/5} \frac{\hbar^{6/5}}{m_n^{3/5}} (\alpha L)^{2/5}, \quad (2)$$

где m_n — нейтронная масса; \hbar — постоянная Планка; α — коэффициент трансформации упругой энергии в энергию оптических фононов решетки, имеющих частоту ω_D (дебаевскую); L — параметр, имеющий смысл предельной упругой энергии, которая может быть запасена кристаллом $L = B_0/V_0\rho$, где B_0 — равновесный модуль всестороннего сжатия, V_0 — объем элементарной ячейки, ρ — плотность кристалла (в частности, для графита $L = 4.2 \cdot 10^3$ эрг/г · см³).

Для оценки величины W'_S с помощью уравнения (2) необходимо определить величину α . Значение α в свою очередь, представляющее собой также вероятность возбуждения в частице фононных мод с частотой ω_D , определяется в жестком случае как [2]

$$\alpha = \frac{1}{\pi^{5/2}} \frac{m_n c^2}{(\hbar \omega_D)^2} (\hbar m_n)^{1/2} (\beta E_t)^{1/2}, \quad (3)$$

где c — скорость света; E_t — полная энергия, подводимая к кристаллической частице; β — коэффициент, представляющий собой долю упругой энергии от всей подводимой (E_t), поглощенной частицей при механическом воздействии, так что $\langle E_{упр} \rangle = \beta E_t$ (в первом приближении коэффициент β можно рассматривать как отношение энергии, запасаемой в "упругом слое" частицы радиуса r_{\min} , к полной энергии, подведенной к ней [3,10]).

Нетрудно убедиться, что коэффициент β может быть оценен из данных рентгеноструктурного анализа для диспергированных ($\tau = 70$ мин) порошков С + D₂O (H₂O), сохраняющих кристаллические свойства (рис. 5). Действительно, по определению, в частице размером r_{\min}

коэффициент $\beta = EV_D/EV_{\min}$, где V_D — объем слоя, в котором запасена упругая энергия, V_{\min} — объем частицы размером r_{\min} . Полагая, что частица состоит из n элементарных ячеек и имеет в простейшем случае радиус nr_0 (где r_0 — параметр решетки), имеем $\beta = 4\pi(nr_0)^2 n \Delta r / (4/3)\pi r_0^3 n^3$, где Δr — элементарная деформация связи r_0 , откуда $\beta \simeq \Delta r / r_0 = \varepsilon$. Таким образом, величина β в первом приближении оказывается равной значению микроискажения решетки ε , которое в кристаллических системах возникают преимущественно при запасании энергии упругих деформаций. Для времени измельчения графита $\tau = 70$ мин значение $\varepsilon \simeq \beta = 0.01$ (рис. 4, б). Подстановка $\beta = 0.01$ и $E_t = 10$ Вт/г в уравнение (3) с учетом $\omega_D = 10^{14}$ Гц приводит к значению $\alpha \simeq 0.25$. Значение коэффициента концентрирования упругой энергии α может быть также получено из рассмотрения рентгенограмм образцов графита. Как было показано ранее в [1–3], минимальный размер частиц, достигаемый при подводе к дисперсной кристаллической среде потока упругой энергии, выразится как

$$r_{\min} = \mu \omega_D^2 / \alpha L, \quad (4)$$

где μ — коэффициент Пуассона, определяющий наименьший линейный размер асимметричной частицы (в частности, в графите).

Для графита при $\mu = 0.25$, $\omega_0 = 10^{14}$ Гц и $\alpha < 1$ теоретический наименьший размер $(r_{\min})_{th} = 58 \text{ \AA}$, что весьма близко к размеру кристаллита (ОКР) $D/2 = 56 \text{ \AA}$ для системы С + D₂O, диспергированной в течение 70 мин (рис. 4, а). Действительно, поскольку ОКР является размером кристаллита D, то разумно предположить, что величина D должна быть средним минимальным линейным размером частиц, на которые можно разобрать агрегат радиусом, определяемым методом низкотемпературной адсорбции азота (БЭТ) (рис. 3). Так как в реальных случаях в (4) $\alpha < 1$ и, полагая $r_{\min} = r_{БЭТ}$, $(r_{\min})_{th} = r_{ОКР} = D/2$, получим выражение для α

$$\alpha = r_{ОКР} / r_{БЭТ}, \quad (5)$$

откуда $\alpha \simeq 0.28$, что удовлетворительно совпадает с аналогичным значением, полученным из выражения (3) для случая "жесткого" концентрирования упругой энергии [2]. Отметим, что определение α для времени диспергирования $\tau = 160$ мин не имеет смысла, поскольку формулы (3) и (4) в этом случае не применимы.

Знание величины α позволяет провести оценку критического размера частиц графита (r_c). При размере частиц $r < r_c$ поглощение упругой энергии в них приобретает квантовый характер [1], что позволяет применить выражения (2) и (3) для описания наблюдаемого эффекта. Поэтому минимальный размер еще остающихся преимущественно кристаллическими частиц графита при времени диспергирования $\tau = 70$ мин должен быть меньше r_c . В противном случае квантовую модель поглощения упругой энергии в частицах графита применять нельзя. Поскольку $r_c = (v_s c)^{1/2} / \alpha \cdot \omega_D$ [3] (где

v_s — скорость звука в графите, c — скорость света), то при $\alpha = 0.25$ величина $r_c = 4.2 \cdot 10^{-6}$ см, тогда как при $S_{max} = 72 \text{ м}^2/\text{Г}$ ($\tau = 70$ мин) средний размер частиц графита $r_{min} \simeq 1.9 \cdot 10^{-6}$ см. Отсюда следует, что при $\tau = 70$ мин поглощение упругой энергии в частицах графита действительно носит квантовый характер и применение квантовой модели обосновано. Подстановка значения α в уравнение (2) позволяет оценить энергию КМВ в частицах графита. При $\alpha = 0.25$ величина $W'_S = 9 \text{ МэВ/нуклон}$, что значительно превышает энергию связи дейтерона (2.22 МэВ). Поэтому с большой долей уверенности можно считать, что расщепление дейтерона при взаимодействии с КМВ в рассматриваемом случае будет происходить.

В работе [2] было показано, что в случае "жесткого" концентрирования упругой энергии в кристалле (концентрирование КМВ на одном или нескольких нуклонах ядра) выполняется условие $\langle E_{упр} \rangle = \alpha W'_S$, где $W_S = N_S W'_S$. При этом W_S — суммарная энергия КМВ в единице массы кристалла в единицу времени, N_S — число таких возбуждений, откуда с учетом $\langle E_{упр} \rangle = \beta E_t$ имеем:

$$N_S = \beta E_t / \alpha W'_S. \quad (6)$$

Подставляя в (6) известные значения α , β , E_t и W'_S , получим $N_S = 2.4 \cdot 10^{11}$ КМВ/Г · с. С учетом (6) выражение (1) приобретает вид

$$\dot{N}(C^{14}) = (\beta E_t / \alpha W'_S) P_d P_{C^{13}} P_n. \quad (7)$$

Для нахождения $\dot{N}(C^{14})$ нам теперь осталось оценить вероятности P_d , $P_{C^{13}}$ и P_n . Вероятности P_d и $P_{C^{13}}$ определяются тривиально, как отношения атомных концентраций дейтерия или C^{13} (при известных весовых значениях) к атомной концентрации углерода (графита). Отсюда $P_d = 6 \cdot 10^{-2}$; $P_{C^{13}} = 10^{-2}$. Значение P_n может быть приблизительно оценено из следующих рассуждений. Поскольку при вибродиспергировании измельчаемое вещество равномерно "размазано" по ячейке (барабану), то объем его, приходящийся на 1 г, будет составлять 1/10 объема ячейки или $v_1 \simeq 10 \text{ см}^3$, которому соответствует поверхность $s_n = 20 \text{ см}^2$. Согласно измерениям с нейтронным детектором, 1 см^2 поверхности ячейки в рабочей зоне пересекает поток тепловых нейтронов $i_0 = 5 \cdot 10^{-2}$ н/с. Поэтому реально в условиях эксперимента в 1 г графита пребывает поток, приблизительно равный $I_n = i_0 s_n = 1 \text{ н/Г} \cdot \text{с}$. Количество нейтронов, взаимодействующих с КМВ, определится количеством КМВ, а также временем τ_n нахождения теплового нейтрона в массе графита ($m = 1 \text{ г}$) и величиной потока тепловых нейтронов, подающих на единицу массы графита (I_n), т.е. $N_n = i_0 s_n \tau_n$ [нейтр./КМВ]. Величина τ_n при достаточно протяженных линейных размерах образца (R_0), т.е. когда $R_0 \gg L_D$ (диффузионной длины нейтрона в графите), будет по порядку величины близка ко времени диффузии тепловых нейтронов τ_D или $\tau_n \simeq \tau_D$. Действительно, поскольку в 1 г графита содержится $\sim 10^{15}$ частиц диаметром $\sim 4 \cdot 10^{-6}$ см (рис. 3, кривая 3), то суммарный

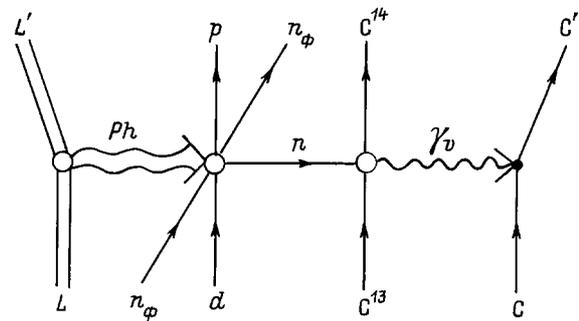


Рис. 6. Фейнмановская диаграмма [6] предполагаемого процесса образования изотопа C^{14} из C^{13} .

линейный размер данной системы превосходит величину 10^9 см, тогда как для графита значение $L_D \simeq 60$ см [11]. Поэтому величина $\tau_n \simeq \tau_D \simeq 1 \cdot 10^{-2}$ с. Таким образом вероятность нахождения фонового теплового нейтрона в зоне действия КМВ будет равна $P_n \simeq N_n = 10^{-2}$.

Итак, подставляя в выражение (7) значение N_S , а также вероятности P_d , $P_{C^{13}}$, P_n получим скорость наработки изотопа C^{14} — $\dot{N}(C^{14}) \simeq 1.4 \cdot 10^6$ атомов $C^{14}/Г \cdot \text{с}$. Это значение, вычисленное теоретически исходя из представлений о квантовом характере поглощения упругой энергии в микрочастицах графита по порядку величины, совпадает с экспериментально наблюдаемым значением $\langle \dot{N}(C^{14}) \rangle = 2 \cdot 10^6$ атомов $C^{14}/Г \cdot \text{с}$. Таким образом, изменение изотопного состава графита (наработка C^{14}) при вибродиспергировании в присутствии дейтерийсодержащей среды с достаточной степенью точности описывается с использованием модели квантового поглощения [1–3] потока упругой энергии в дисперсных частицах графита в присутствии фоновых тепловых нейтронов.

Это обстоятельство позволяет представить возможный вариант механотрансмутации изотопа C^{13} в C^{14} следующим образом (рис. 6). Многофононное когерентное возбуждение решетки ($L \rightarrow L' \rightarrow Ph$), являющееся гигантской флуктуацией плотности упругой энергии, подведенной к дисперсной частице графита, обеспечивает расщепление дейтерона d на протон p и виртуальный нейтрон n . Поскольку время пребывания фонового теплового нейтрона n_ϕ вблизи дейтерона $\tau \simeq 10^{-18}$ с сопоставимо со временем жизни составного ядра $[n + C^{13}]$, то наличие фонового нейтрона приводит к фактической материализации виртуального нейтрона, образованного при расщеплении данного d . Роль фонового теплового нейтрона, таким образом, сводится к "катализу" процессов расщепления дейтерона и передачи нейтрона на ядро-акцептор нейтронов (C^{13}) для обеспечения реакции $n + C^{13} \rightarrow C^{14} + \gamma_v$ (где γ_v — виртуальный γ -квант). Далее фоновый нейтрон продолжает движение внутри частицы и взаимодействует с другими КМВ до тех пор, пока не покинет кристалл. Образующееся в результате захвата нейтрона ядро C^{14} сбрасывает энергию, равную энергии связи нейтрона в ядре C^{14} , на решетку графита в виде виртуального γ -кванта (обратный эффект Мессбау-

эра [12,13]), в результате чего образуются возбужденные атомы углерода ($C \rightarrow C^*$) и дефекты структуры графита. Отметим еще раз, что процесс, представленный на рис. 6, может протекать эффективно лишь при высокой степени кристалличности графита, когда характер поглощения потока упругой энергии его частицами имеет существенно квантовый когерентный характер. При потере кристаллической структуры КМВ образоваться не могут, в силу отсутствия дальнего порядка в частице твердого тела. Поэтому при больших временах диспергирования ($\tau \geq 160$ мин), когда наблюдается сильная аморфизация углеродных частиц (рис. 5), следует ожидать резкого падения скорости наработки C^{14} , которая лимитируется в свою очередь падением скорости образования КМВ.

Обнаруженный эффект увеличения концентрации C^{14} в системе $C + D_2O$ при механических воздействиях вне зависимости от его истинной природы может иметь место и в сейсмоактивных зонах земной коры в присутствии глубинных подземных вод, в которых наблюдается измерение изотопного состава углерода [14,15]. Отметим, что при этом будет возрастать ошибка радиоуглеродного метода определения возраста ископаемых и органических систем, поскольку концентрация C^{14} к моменту измерений определяется не только распадом, но и альтернативным процессом его накопления.

Для подтверждения сделанных выводов в дальнейшем планируется проведение аналогичных экспериментов при различных значениях фона тепловых нейтронов, а также с использованием вместо дейтерия других элементов с малой энергией связи нейтронов.

Авторы выражают благодарность Т.П. Пуряевой за проведение рентгеноструктурных исследований.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ № 94-02-04895 и 95-03-08014.

Список литературы

- [1] Кузнецов В.А., Липсон А.Г., Саков Д.М. // ЖФХ. 1993. Т. 67. № 3. С. 204–209.
- [2] Липсон А.Г., Кузнецов В.А. // ДАН. 1993. Т. 332. № 2. С. 172–175.
- [3] Кузнецов В.А., Липсон А.Г., Саунин Е.И. и др. // ЖТФ. 1996. Т. 66. Вып. 3. С. 75.
- [4] Ходаков Г.С. Физика измельчения. М.: Наука, 1972. 308 с.
- [5] Schwinger J. // Progr. Theor. Phys. 1991. Vol. 85. P. 711–713.
- [6] Hagelstein P.L. // Trans. Fusion Techn. 1994. Vol. 26. N 4T. P. 461–473.
- [7] Липсон А.Г., Саунин Е.И., Ушаков С.И. и др. // Письма в ЖТФ. 1995. Т. 21. Вып. 23. С. 19–25.
- [8] Липсон А.Г., Саков Д.М., Саунин Е.И. // Письма в ЖЭТФ. 1995. Т. 62. Вып. 10. С. 805–810.
- [9] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Статистическая физика. М.: Наука, 1964. 526 с.
- [10] Вольницев А.Б., Шилов А.Н. // ДАН. 1993. Т. 328. № 6. С. 691–693.
- [11] Гуревич И.И., Тарасов Л.В. Физика нейтронов низких энергий. М.: Наука, 1965. 426 с.
- [12] Frauenfelder H. The Mossbauer Effect. New York: Benjamin, 1962.
- [13] Kozima H. // II Nuovo Cimento A. 1994. Vol. 27. P. 1781–1786.
- [14] Конюшая Ю.П. Открытия советских ученых. Ч. 1 (Физико-технические науки). М.: Изд-во Моск. университета, 1988. С. 117.
- [15] Sukumar R., Ramesh R., Pant R.K., Rajagopalan G. // Natura. 1993. Vol. 364. P. 703–706.