

5.02;12

©1995

НАКОПЛЕНИЕ РАДИОУГЛЕРОДА В ГРАФИТЕ ПРИ ВИБРОДИСПЕРГИРОВАНИИ В ПРИСУТСТВИИ D₂O

*А.Г.Липсон, Е.И.Саунин, С.И.Ушаков,
В.А.Кузнецов, Т.С.Иванова, Д.М.Саков*

В работах [1,2] было показано, что при взаимодействии потока упругой энергии с высокодисперсной кристаллической средой внутри малых кристаллических частиц возможно образование гигантских флуктуаций плотности упругой энергии (многофононных когерентных возбуждений), достигающих величины 5–10 МэВ/нуклон. При взаимодействии таких возбуждений с ядрами, обладающими достаточно малой энергией связи, возможно изменение изотопного состава кристалла [3,4] за счет переноса виртуального нейтрона с ядра-донора на ядро-акцептор нейтронов. Поскольку ядра дейтерия (дейтероны) обладают энергией связи $\epsilon = 2.22$ МэВ, то при их взаимодействии с многофононными возбуждениями в кристаллической решетке (матрице), содержащей дейтерий, могло бы фиксироваться изменение изотопного состава матрицы.

Для проверки данной гипотезы нами были осуществлены эксперименты по механическому диспергированию кристаллического углерода (графита) в жестких условиях в присутствии добавки D₂O. Выбор графита обусловлен тем, что он хорошо механически диспергируется и имеет только один долгоживущий β -изотоп C¹⁴, изменение концентрации которого достаточно просто отслеживается с помощью методов радиоуглеродного анализа.

Диспергирование графита (С) совместно с D₂O (H₂O) осуществляли в вибромельнице М-35 с энергонапряженностью 10 Вт/г, в барабанах из нержавеющей стали с помощью стальных шаров диаметром 6 мм. Для увеличения интенсивности механического воздействия барабаны охлаждались жидким азотом через каждые 3 мин помола. 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 $S_{уд} = 6.3$ м²/г. Для увеличения скорости диспергирования часть графита подвергалась вакуумному отжигу (10^{-4} Тор) при темпера-

туре 800 °С. В качестве носителя дейтерия использовали тяжелую воду чистотой 99.9%, которую добавляли в барабан с графитом в количестве 5 масс.%. При проведении контрольных экспериментов использовали аналогичную систему, в которой D₂O заменяли на H₂O (бидистиллят), а также индивидуальное диспергирование графита без добавок воды. Диспергирование систем C + D₂O и C + H₂O осуществлялось в фиксированные промежутки времени: в первой серии экспериментов — 70 мин (отожженный графит), во второй серии — 160 мин. Чтобы предотвратить случайные процессы активации углерода нейтронами флуктуирующего во времени космического фона и повысить таким образом воспроизводимость результатов по C¹⁴, нейтронный фон в рабочей зоне поддерживался постоянным и превышал среднее значение космического фона примерно 10 раз. С этой целью во всех экспериментах на расстоянии 90 см от рабочего барабана вибротельнички размещался Cf²⁵²-источник нейтронов в полиэтиленовой защите (толщиной 2.5 см), интенсивностью 300 н/с в телесный угол 4π.

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 БУС-2-47, 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 C¹⁴, Tc⁹⁹ и Tl²⁰⁴ (рис. 1, кривые 1-3). Эффективность детектора по отношению к C¹⁴ с учетом калибровки составила 35% (для Tl²⁰⁴ — 73%). С целью повышения точности регистрации β-излучения от C¹⁴ счет этого радионуклида осуществлялся лишь в каналах с 21 по 60 (рис. 1, кривая 1). Одновременно для определения в образцах следов высокоэнергетических β-нуклидов непрерывно контролировалась скорость счета в 61-250 каналах анализатора. Измерения β-счета графита чередовались с фоновыми измерениями (без графитовых

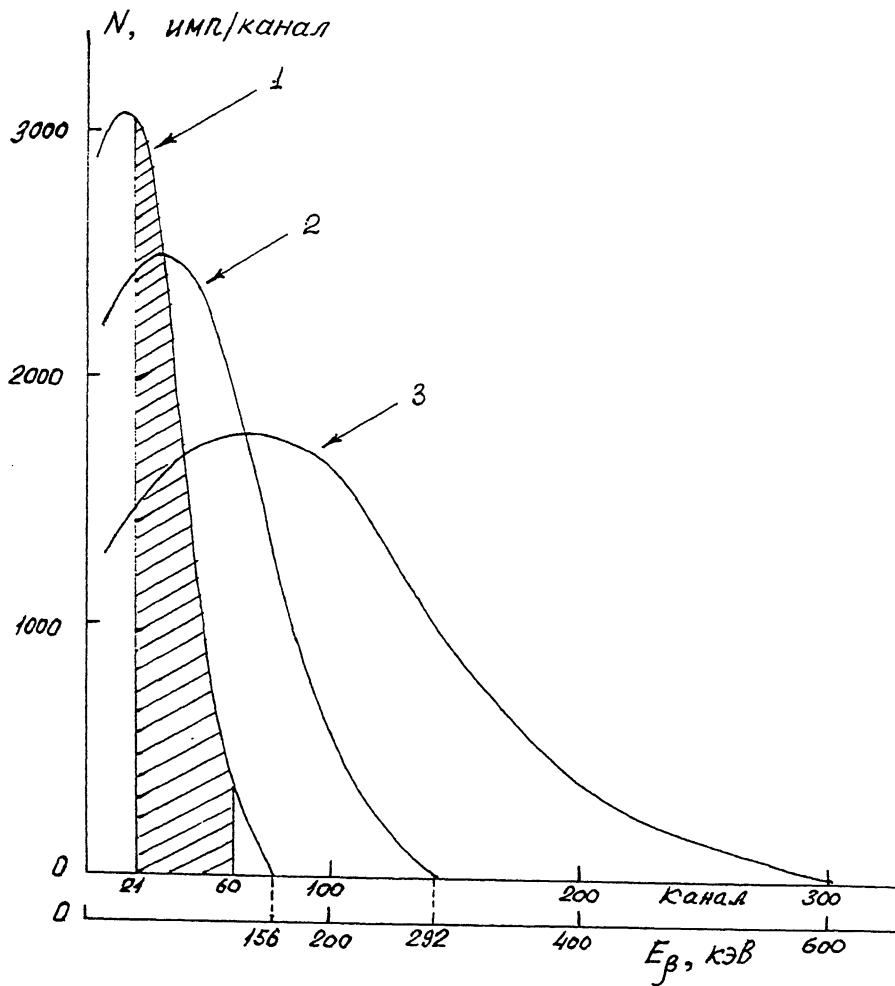


Рис. 1. Спектры β -излучения нуклидов C^{14} (кривая 1), Tc^{99} (кривая 2) и Tl^{204} (кривая 3), измеренные с помощью пластикового сцинтиллятора SPF35U04. Заштрихованная область кривой 1 соответствует регистрируемому β -счету по C^{14} .

навесок). Полученные значения нормировались на средние уровни фона, измеренного в дни работы с соответствующими графитовыми образцами.

Результаты измерений представлены в таблице. Как видно из таблицы, 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 $C + H_2O$,

Параметры β -счета образцов графита, диспергированных в различных условиях

№ п/п	Образец	$S_{уд}$, м ² /г	$N \cdot 10^{-2}$, отсч/с		$\Delta N \cdot 10^{-2}$, отсч/с		$\Delta n(C^{14})$, Бк/г (21-60)
			(21-60)	(61-250)	(21-60)	(61-250)	
1	Фон	—	7.00 ± 0.14	14.60 ± 0.31	—	—	—
2	С (исх)	6.3	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	—	—	—
4	С + H ₂ O ($\tau = 70'$)	95	7.00 ± 0.14	14.52 ± 0.31	0.58 ± 0.21	0.00 ± 0.46	1.63 ± 0.44
5	С + D ₂ O ($\tau = 70'$)	72	7.58 ± 0.15	14.52 ± 0.31	—	—	—
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	1.20 ± 0.23	1.00 ± 0.50	3.43 ± 0.45

$S_{уд}$ — 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.

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 $v(C^{14}) = 2 \cdot 10^6$ ат. $C^{14}/г \cdot с$.

Обсудим возможные причины увеличения скорости β -счета в соответствующей C^{14} области энергий в диспергированных образцах $C + D_2O$ по сравнению с образцами $C + H_2O$.

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

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

А. Можно предположить, что углерод (в том числе и сконцентрированных 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 масс.%. 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. 1, кривые 2, 3), образовавшихся в результате радиоактивных загрязнений и т. п. В этом случае в β -спектрах продуктов измельчения в области энергий $E > 156$ кэВ должно наблюдаться превышение над фоном. При малых временах помола ($\tau = 70$ 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 $C + D_2O$ и $C + H_2O$ 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 радиуглерода 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} и, следовательно, они не могут являться главной причиной увеличения β -счета в энергетическом интервале, отвечающем радиуглероду.

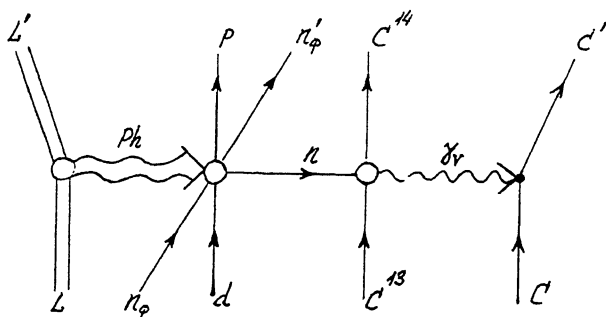


Рис. 2. Фейнмановская диаграмма [4] предполагаемого процесса образования изотопа C^{14} , где $(L \rightarrow L')$ — возбуждение кристаллической решетки, γ_v — виртуальный γ -квант, $(C \rightarrow C')$ — сброс возбуждения на атомы графита.

3. Влияние химических изотопных эффектов. Предположим, что по каким-либо причинам в системе $C + D_2O$ происходит преимущественное “выгорание” основных (легких) изотопов C^{12} и C^{13} по сравнению с системой $C + H_2O$. В этом случае должна наблюдаться значительная потеря массы исходной загрузки (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). Концентрация C^{14} в образцах $C + D_2O$ 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 D_2O и отсутствие такого эффекта в системе $C + H_2O$ невозможно объяснить влиянием радиоактивных загрязнений, продуктов намола или химических изотопных эффектов. Поэтому следует предположить, что повышение концентрации радиоуглерода при диспергировании системы $C + D_2O$ является следствием ядерных превращений (трансмутации) легкого изотопа C^{13} в изотоп C^{14} при взаимодействии многофононных возбуждений с дейтеронами в кристаллической решетке графита в присутствии

фоновых тепловых нейтронов [4,5] (рис. 2). В данном случае многофононное возбуждение Rh обеспечивает расщепление дейтерона (d) на протон (p) и нейтрон (n) в присутствии фонового теплового нейтрона (n_{ϕ}). Образующийся в результате такого процесса нейтрон захватывается близкорасположенным ядром C^{13} , которое превращается в C^{14} , сбрасывая при этом энергию, равную энергии связи нейтрона на решетку в виде виртуального γ -кванта. Следует отметить, что реакции, представленные на рис. 2, могут эффективно протекать лишь при высокой степени кристалличности графита [1]. Поэтому при больших временах диспергирования, когда наблюдается сильная аморфизация углеродных частиц, следует ожидать резкого уменьшения скорости наработки C^{14} , которая лимитируется падением скорости образования многофононных возбуждений.

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 изменение изотопного состава углерода [6]. Отметим, что при этом будет возрастать ошибка радиоуглеродного метода определения возраста ископаемых органических систем, поскольку концентрация C^{14} к моменту измерений определяется не только распадом, но и альтернативным процессом его накопления.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ 94-02-04895 и 95-03-08014.

Список литературы

- [1] Липсон А.Г., Кузнецов В.А. // ДАН. 1993. Т. 332. № 2. С. 172-175.
- [2] Липсон А.Г., Кузнецов В.А., Лятов Б.Ф., Иванов Т.С. // ЖТФ. 1995. Т. 65. № 7. С. 68-80.
- [3] Schwinger J. // Progr. Theor. Phys. 1991. V. 85. P. 711-713.
- [4] Hagelstein P.L. // Trans. Fusion Tech. 1994. V. 26. N 4. P. 461-473.
- [5] Kozima H. // Nuovo Cimento A. 1994. V. 27. P. 1781-1786.
- [6] Конюшина Ю.П. Открытия советских ученых. Ч. 1 (Физ.-техн. науки). М.: Изд-во Моск. ун-та, 1988. С. 117.

Институт
физической химии
РАН
Москва

Поступило в Редакцию
25 сентября 1995 г.