

05.3;12

©1995

**ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ СЛАБОГО
НЕЙТРОННОГО ПОТОКА С КРИСТАЛЛАМИ
ТРИГЛИЦИНСУЛЬФАТА ($D_{0.6}H_{0.4}$)
ПРИ ФАЗОВОМ ПЕРЕХОДЕ
ПАРАЭЛЕКТРИК-СЕГНЕТОЭЛЕКТРИК**

А.Г.Липсон, Д.М.Саков, Е.И.Саунин

В работе [1] обнаружено аномальное увеличение сечения захвата тепловых нейтронов в твердых телах, содержащих одновременно атомы водорода и дейтерия при образовании в них молекулярных комплексов типа $[D^+H^-]$. Наличие подобного эффекта может явиться одной из главных причин отсутствия воспроизводимости генерации нейтронов в твердотельных dd -реакциях, протекающих в дейтерированных сегнетоэлектрических кристаллах при фазовом переходе через точку Кюри и в процессе их переполяризации во внешних электрических полях [2-5]. В таком случае при достаточно высоком содержании водорода (соизмеримом с концентрацией дейтерия) сегнетоэлектрический кристалл в окрестности T_C не только должен перестать генерировать избыточные нейтроны, но и стать их поглотителем, что привело бы к уменьшению нейтронного фона установки. Значительное увеличение вероятности захвата нейтронов при фазовом переходе могло бы также привести к изменению электрофизических свойств сегнетоэлектрических кристаллов (эффект малых доз) в окрестности T_C . Отметим, что влияние малых потоков нейтронов на электрофизические свойства ТГС не исследовалось в отличие от эффектов малых доз γ -излучения [6]. Влияние нейтронного облучения реакторными потоками ($I_n \sim 10^{10}$ н/см²) на электрофизические свойства ТГС изучалось в [7].

Для проверки высказанных выше предположений в настоящей работе исследованы процессы взаимодействия термализованных нейтронов с кристаллической решеткой частично дейтерированных кристаллов ТГС в окрестности T_C . В качестве образцов использовали монокристаллы триглицинсульфата (ТГС) $(ND_2CD_2COOH)_3 \cdot D_2SO_4$ с общим содержанием дейтерия $\sim 60\%$ ($T_C = 57.6^\circ C$). Образцы размером $10 \times 10 \times 2$ мм³ вырезались из монокристаллической пластины в направлении (010). Контроль температурного по-

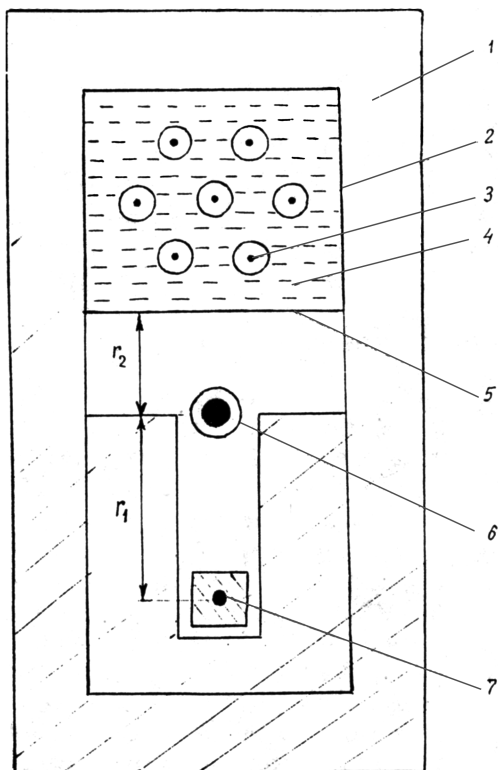


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — полиэтилен (Со), 2 — детектор, 3 — счетчики, 4 — силиконовое масло, 5 — Cd-фольга, 6 — криостат с кристаллом ТГС, 7 — Cf²⁵²-источник нейтронов.

ложения и электрической активности сегнетоэлектрического фазового перехода осуществлялся методом термостимулированной деполяризации (ТСД). С этой целью образцы с нанесенными омическими контактами закреплялись с дозированной нагрузкой ($F = 100 \pm 10$ г) между двумя электродами [8]. Образцы с электродами и терморпара с целью предотвращения электромагнитных помех в цепи ТСД помещались в герметичный алюминиевый кожух, в котором также был размещен нагреватель. Нагрев и охлаждение образцов осуществлялись в линейном режиме со скоростью 0.15 К/с в интервале 283–373 К. Для регистрации нейтронов использовали покрытый кадмиевым листом блок пропорциональных счетчиков нейтронов NWI-62 [2,3], окруженный пассивной защитой из полиэтиленовых блоков “neutrostop” (Со) толщиной 15 см. Схема установки представлена на рис. 1. Для экспериментов с нейтронными потоками раз-

личной интенсивности (выше космического нейтронного фона) и калибровки детектора использовали Cf^{252} -источник нейтронов с интенсивностью ~ 270 н/с в телесный угол 4π . Источник, находящийся внутри свинцовой капсулы диаметром 4 см, помещали внутрь полиэтиленового блока с толщиной стенок 2.5 см. Источник располагался на расстоянии $r_1 = 10$ см от поверхности образца, который, в свою очередь, находился на расстоянии $r_2 = 6$ см от детектора нейтронов. Эффективность детектора по отношению к нейтронам от Cf^{252} -источника, определяемая с помощью калибровки на расстоянии $r_2 = 6$ см, составила $E = 1.1\%$.

Всего на образцах ТГС было выполнено 50 циклов нагрев-охлаждение (проходов через T_C) в условиях космического нейтронного фона и 40 аналогичных циклов в процессе облучения источником нейтронов при фоне детектора, приблизительно в 100 раз превышающем космический фон ($N_\phi/N_{\text{кф}} \simeq 100$). В качестве контрольных (фоновых) экспериментов проводилось измерение фона в температурных интервалах, лежащих вне области электрической активности образцов ТГС, т. е. вне окрестности T_C : 283–303 К ($T \ll T_C$) и 353–373 К ($T \gg T_C$), в которых нагрев и охлаждение осуществлялись с той же скоростью, что и в интервале 310–350 К. Фон установки с образцом в отсутствие Cf^{252} при комнатной температуре не испытывал значительных флуктуаций и составил за длительное время ($\tau \sim 10\,000$ с) $N_\phi = 1.4 \pm 0.1 \cdot 10^{-2}$ отсч/с.

Как следует из таблицы, отрицательный эффект в температурном интервале, соответствующем окрестности точки Кюри, наблюдается как для случая космического нейтронного фона (серия I), так и при использовании Cf^{252} источника нейтронов (серия II). При этом абсолютная ве-

Параметры нейтронного фона установки в сериях экспериментов в отсутствие (I) и с Cf^{252} -источником нейтронов (II) при фазовом переходе кристалла ТГС через точку Кюри

Серия	$\langle N_\phi \rangle$, отсч/с	$\langle N_{\text{эф}} \rangle$, отсч/с	$\Delta N \cdot 10^{-3}$, отсч/с
I 50 циклов	$(1.41 \pm 0.11) \cdot 10^{-2}$	$(1.00 \pm 0.10) \cdot 10^{-2}$	$-(4.1 \pm 1.4)$
II 40 циклов	1.260 ± 0.016	1.176 ± 0.015	$-(84 \pm 20)$

$\langle N_{\text{эф}} \rangle$ — среднее число отсчетов, полученных в циклах нагрев-охлаждение в окрестности T_C ; $\langle N_\phi \rangle$ — среднее число отсчетов, полученных в циклах нагрев-охлаждение при $T \ll T_C$ и $T \gg T_C$ (фон контрольных экспериментов); $\Delta N = \langle N_{\text{эф}} \rangle - \langle N_\phi \rangle$.

личина отрицательного эффекта увеличивается примерно в 20 раз в экспериментах с Cf^{252} -источником нейтронов по сравнению с экспериментами в космическом фоне при одновременном росте статистической достоверности почти в два раза. В результате взаимодействия с кристаллом ТГС вблизи T_C происходит ослабление потока нейтронов от Cf^{252} -источника на величину 2.0–2.5%. Эксперименты показали, что внутри ПЭ-защиты поток нейтронов убывает как $N \sim r^{-1}$ (где r — расстояние источник–детектор) при $r > 10$ см, тогда как на малых расстояниях ($r < 10$ см) $N \sim r^{-1/n}$, где $2 < n < 3$. Это обусловлено тем, что термализованные внутри ПЭ-защиты нейтроны могут многократно пересекать одну и ту же плоскость, испытывая множественные отражения от ПЭ-стенок [9]. С учетом полной площади поверхности образца ($S_{\text{обр}} = 2.8 \text{ см}^2$) количество термализованных нейтронов, пересекающих образец в единицу времени в данной геометрии, составит ~ 20 н/с. Отсюда следует, что сечение захвата тепловых нейтронов [10] в образцах ТГС в окрестности T_C должно быть, по крайней мере, на 3 порядка выше (~ 700 б), чем для водорода, входящего в состав кристалла ТГС.

Захват термализованных нейтронов в кристалле ТГС в окрестности T_C , как видно из рис. 2 (а, б), приводит к значительному изменению спектров ТСД по сравнению с аналогичными спектрами, полученными для этого же кристалла в отсутствие Cf^{252} -источника (в условиях космического фона). Во-первых, резко увеличивается интенсивность сигнала ТСД для облученных образцов 2. Во-вторых, для образцов 2 наблюдается смещение максимумов тока ТСД как в нагреве, так и в охлаждении на 3.5 К в область низких температур, что указывает на соответствующее уменьшение T_C по сравнению с образцами, термоциклированными в условиях космического нейтронного фона (образец 1). В-третьих, энергия активации процесса ТСД для образца 2, рассчитанная по методу Гарлика–Гибсона [8] составляет в охлаждении $(\delta_{\text{ох}})_2 = 1.3 \pm 0.1$ эВ, в нагреве $(\delta_{\text{н}})_2 = 1.5 \pm 0.1$ эВ, тогда как для образца 1 соответственно $(\delta_{\text{ох}})_1 = 1.0 \pm 0.1$ эВ, $(\delta_{\text{н}})_1 = 1.2 \pm 0.1$ эВ. То есть для облученных образцов имеет место возрастание энергии активации процесса переполаризации примерно на 0.3 эВ. Отметим также, что изменение электрической активности кристалла ТГС при облучении малыми потоками тепловых нейтронов происходит лишь в момент облучения и только в окрестности T_C .

Рассмотрим возможные причины наблюдаемых эффектов. Сдвиг T_C в область низких температур в сегнетоэлектрических кристаллах на величину ~ 3.5 К указывает на то, что кристалл в процессе проведения измерений становится

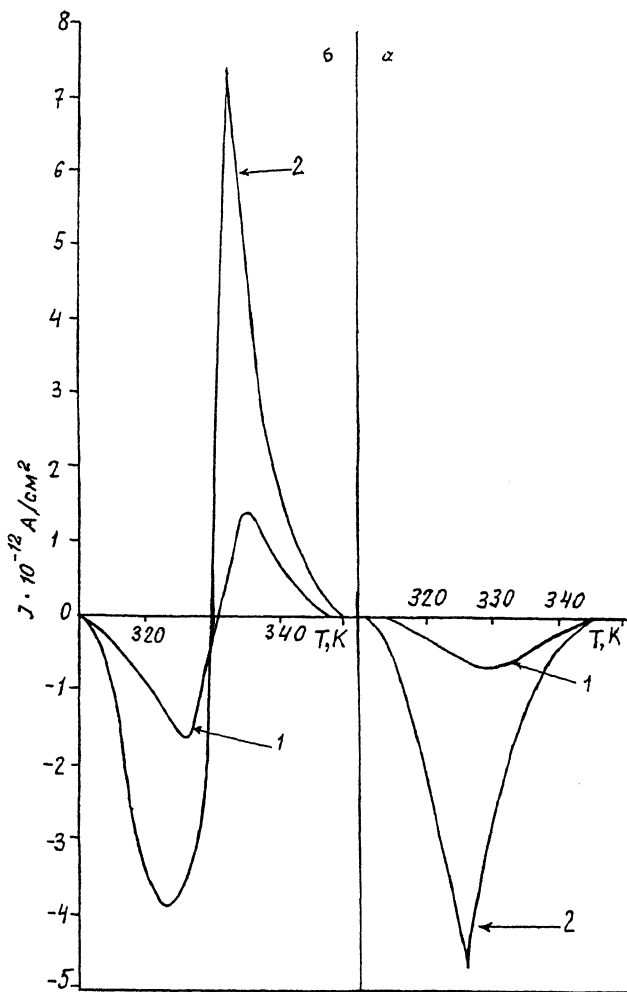


Рис. 2. а — спектры ТСД образца ТГС при охлаждении в условиях космического нейтронного фона (кривая 1); с Cf^{252} -источником нейтронов (кривая 2); б — то же для случая нагрева.

механически зажатым между двумя электродами [6]. Причиной этого эффекта является частичное подавление спонтанных деформаций в кристалле, приводящее к подавлению спонтанной поляризации в области $T > T_C$ по сравнению со “свободным” кристаллом. Подавление спонтанной деформации, очевидно, обусловлено переходом части упругой энергии доменных стенок в энергию пластических дефор-

маций при взаимодействии кристалла ТГС с потоком тепловых нейтронов, поскольку в условиях космического фона кристалл можно считать "свободным". Выделяемая в таком процессе энергия пластических деформаций расходуется на диэлектрические потери при трении доменов, генерацию заряженных дислокаций, микротрещин и т. д. Это приводит к возрастанию поверхностного заряда в кристалле. При этом возрастает интенсивность сигнала ТСД и увеличивается энергия активации переполаризации вследствие увеличения механического сопротивления переключению доменов при возрастании дефектности структуры ТГС. Процесс переполаризации кристалла ТГС в обычном случае (без облучения) определяется переходом водорода из группы COOH иона глициния на дипольный ион $(\text{ND})_2\text{D}^+\text{CH}_2\text{COO}^-$: $((\text{ND}_2)\text{D}^+\text{CD}_2\text{COO}^-)(\text{ND}_3^+\text{CDCOOH})_2\text{SO}_4^{2-}$. В результате происходит смещение и переупорядочение атомов азота глиционовых групп и ионов глициния, следствием чего является образование поляризованного состояния. В случае облучения, т. е. при наличии избыточной энергии пластических деформаций вблизи доменной стенки может происходить разрыв короткой водородной связи COOH в группе $(\text{ND}_2)\text{D}^+\text{CD}_2\text{COO}^-$. При этом атом водорода становится подвижным и может перейти на группу $(\text{ND}_2)\text{D}^+$, где, по-видимому, происходит образование комплекса $[\text{D}^+\text{H}^-]$. Кроме того, образуется дополнительный отрицательный заряд COO^- , который увеличивает поляризацию образца. Энергия разрыва короткой водородной связи $E_{\text{H}} = 0.3 \text{ эВ/атом}$. Эта энергия по величине соответствует разности $\delta_2 - \delta_1$, т. е. разности энергии активации процессов переполаризации облученного и необлученного кристалла.

Нетрудно убедиться, что энергия, необходимая для увеличения электрической активности ТГС при облучении может быть обеспечена при захвате пересекающих кристалл тепловых нейтронов. Действительно, среднее значение заряда в облученных кристаллах, рассчитанное из рис. 2, а составило $\Delta Q = 8 \cdot 10^{-10} \text{ кл/см}^2 \cdot \text{с}$, что соответствует $n \sim 2 \cdot 10^7$ элементарных зарядов, образованных дополнительно в кристалле под действием облучения. Энергия, необходимая для образования такого числа зарядов, с учетом приведенных выше рассуждений составит $W_e = n_e E_{\text{H}}$, где E_{H} — энергия короткой водородной связи в ТГС. Откуда $W_e \simeq 6 \cdot 10^6 \text{ эВ/с}$. С другой стороны, как показано выше, ежесекундно на переходе через T_{C} в кристалле захватывается I_n нейтронов: $I_n \simeq 6 \text{ н/с}$. Полагая, что захват нейтронов на доменных стенках происходит безызлучательно (по аналогии с эффектом Мессбауэра [11,12]), с передачей энергии захватного излучения ($E_{\gamma} \geq 2.22 \text{ МэВ}$) на решетку

получим суммарную мощность, выделяемую при нейтронном облучении кристалла $W_n \geq 1.32 \cdot 10^7$ эВ/с. Очевидно, что $W_n > W_e$ и поэтому энергии, выделяемой в неупругой форме при захвате тепловых нейтронов от Cf^{252} -источника, достаточно для создания экспериментально наблюдаемого "избыточного" заряда в облученных образцах ТГС.

Таким образом, в работе обнаружено аномальное увеличение сечения захвата тепловых нейтронов в кристалле ТГС ($\text{D}_{0.6}\text{H}_{0.4}$) при фазовом переходе через точку Кюри. Взаимодействие слабых потоков термализованных нейтронов с кристаллической решеткой ТГС приводит к увеличению электрической активности и частичному подавлению спонтанных деформаций (зажатию) исследованных образцов.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ-94-02-04895.

Список литературы

- [1] *Cerofolini G.F., Voara G., Agosteo S., Para A.F.* // Fusion Technol. 1993. V. 23. P. 465.
- [2] *Липсон А.Г., Саков Д.М., Калинин Б.В., Дерягин Б.В.* // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 16. С. 90.
- [3] *Липсон А.Г., Саков Д.М., Саунин Е.И. и др.* // ЖЭТФ. 1993. Т. 103. В. 6. С. 2142.
- [4] *Липсон А.Г., Саков Д.М.* // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. В. 23. С. 46.
- [5] *Shani G., Cohen C., Grayevsky A., Brokman A.* // Solid State Commun. 1989. V. 72(1). P. 53.
- [6] *Иона Ф., Ширане Д.* Сегнетоэлектрические кристаллы М.: Мир, 1965. 556 с.
- [7] *Fatuzzo E.* // Helv. Phys. Acta. 1960. V. 33. P. 501.
- [8] *Липсон А.Г., Саков Д.М., Громов В.В.* // Письма в ЖЭТФ. 1992. Т. 55. В. 7. С. 402.
- [9] *Гуревич И.И., Тарасов Л.В.* Физика нейтронов низких энергий. М.: Наука, 1965. 386 с.
- [10] *Александров Ю.А.* Фундаментальные свойства нейтрона. 2-е изд. М.: Наука, 1982. 460 с.
- [11] *Hagelstein P.L.* // Trans. Fusion Tech. 1994. Т. 26(4Т). P. 461.
- [12] *Kozima H.* // Il Nuovo Cimento A. 1994. V. 27. P. 1781.

Институт
физической химии РАН
Москва

Поступило в Редакцию
9 октября 1995 г.