

05.3;12

## ЭМИССИЯ ЖЕСТКИХ $\gamma$ -КВАНТОВ, СОПРОВОЖДАЮЩАЯ ИМПУЛЬСНЫЙ ТЕПЛОВОЙ ЭФФЕКТ В ГЕТЕРОСТРУКТУРЕ Pd/PdO:D

© А.Г.Липсон, Б.Ф.Ляхов, И.И.Бардышев

Ранее в работах [1-3] нами было обнаружено, что в тонких гетероструктурах типа Pd/PdO (толщиной 20-100 мкм), насыщенных водородом (дейтерием) электрохимическим методом, при взаимодействии с кислородом наблюдается импульсный тепловой эффект, превышающий в 2-5 раз затраты на электролиз. При насыщении гетероструктур дейтерием в [2-4] наблюдалась эмиссия нейтронов, связанная с деформацией образцов и достигавшая значения  $\sim 5 \cdot 10^2$  нейтр/импульс (во временном интервале  $\sim 1$  мс). Данные, полученные в [1-3], позволили также сделать вывод о ядерной природе "избыточного" тепловыделения в гетероструктуре Pd/PdO:D (H), связанного с "атомным" синтезом водорода (дейтерия) на межфазной границе Pd-PdO. В свою очередь, эмиссия нейтронов, регистрируемая в образцах Pd/PdO:D<sub>x</sub>, обусловлена фазовым переходом кластеров конденсированного состояния дейтерия в квазиметаллическое состояние в процессе упругой и пластической деформации образцов, влекущей за собой и значительное уменьшение расстояния между дейтеронами [5,6].

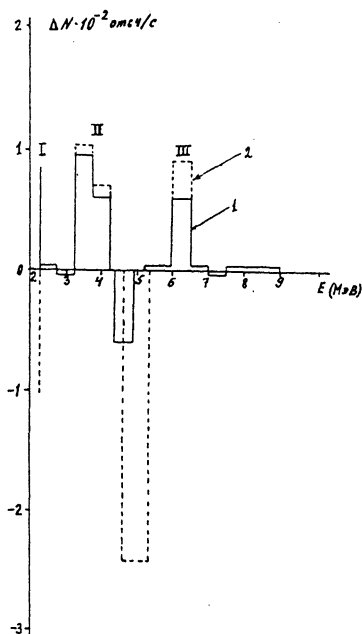
Если предположение о сближении дейтеронов в гетероструктуре Pd/PdO в моменты времени, предшествующие тепловой вспышке, верно, то наряду с эмиссией нейтронов в образцах Pd/PdO:D<sub>x</sub> могут наблюдаться и другие виды ядерных излучений (в частности,  $\gamma$ -эмиссия), сопутствующие dd-слиянию в условиях концентрирования упругой энергии. Так, в работе [7] нами обнаружена эмиссия жестких  $\gamma$ -квантов ( $E_\gamma \simeq 4$  МэВ) в процессе фазового перехода монокристаллов KD<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> (DKDP) в сегнетоэлектрическое состояние, сопровождающее эмиссию нейтронов в той же температурной области [8]. Было показано, что  $\gamma$ -эмиссия при фазовом переходе через  $T_C$  является следствием распада первого возбужденного состояния ядра He<sup>4</sup> по каналу  $T + p$ , при прямой передаче  $\sim 4$  МэВ энергии составному ядру He<sup>4</sup> от многофононных возбуждений в решетке. Поскольку в ге-

тероструктуре Pd/PdO:D существуют микрокластеры дейтерия, аналогичные доменам и в процессе тепловой вспышки в образце выделяется энергия упругих деформаций, то следует ожидать, что при сближении дейтериевых в кристаллической решетке Pd/PdO также возможна эмиссия  $\gamma$ -квантов.

В настоящей работе с целью наблюдения  $\gamma$ -эмиссии в гетероструктуре Pd/PdO:D<sub>x</sub> были выполнены точные спектральные измерения в области энергии  $\gamma$ -квантов 2.0–9.0 МэВ. В качестве образцов в экспериментах использовали холоднокатаные Pd-фольги (чистотой 99.9%) толщиной 30–100 мкм площадью 3 см<sup>2</sup>, отожженные в вакууме 10<sup>-6</sup> Тор в течение 2 ч при температуре 600° С и окисленные по методике [1–3]. Насыщение образцов водородом или дейтерием осуществлялось электрохимическим способом в 1М растворе КОН (NaOD) [1–3]. После проведения электролиза (плотность тока  $j = 20$  мА/см<sup>2</sup>,  $\tau = 40$  мин) образцы промывались в H<sub>2</sub>O (D<sub>2</sub>O), высушивались и помещались в стеклянный цилиндр, в который подавался кислород. В цилиндре происходила тепловая вспышка. Регистрация  $\gamma$ -излучения образцов осуществлялась с помощью коаксиального низкофонового детектора GEM-20180-P фирмы EG & G ORTEC (на базе кристалла Ge высокой чистоты диаметром 50.7 мм и высотой 64.4 мм) [7]. Гамма-фон установки, измеряемый перед началом экспериментов, между ними и после их окончания обнаруживает многочисленны  $\gamma$ -линии радионуклидов, содержащихся в окружающей среде, энергия которых простирается до значений  $\sim 2.6$  МэВ. В области  $E > 2.6$  МэВ фон детектора равномерен по шкале энергий и не содержит  $\gamma$ -линий. Согласно результатам калибровки детектора с помощью стандартного источника Na<sup>22</sup>, с учетом геометрии эксперимента полная эффективность детектора в области 2.0–9.0 МэВ составила  $\sim 2.5 \cdot 10^{-3}$ .

Всего было осуществлено 100 экспериментов на образцах Pd/PdO:D<sub>x</sub> ( $x = 0.72$ ) и 80 экспериментов на образцах Pd/PdO:D<sub>x</sub> ( $x = 0.72$ ). В качестве контрольных (фоновых) данных использовали счет в фоне теплового эффекта в системе Pd/PdO:H,  $\gamma$ -спектры которого вычитались из  $\gamma$ -спектров Pd/PdO:D. Регистрация  $\gamma$ -квантов в процессе проведения экспериментов осуществлялась от момента начала контактов образцов с O<sub>2</sub>, включая протекание тепловой вспышки, и 30 с после ее окончания [1].

Эксперименты показали, что для образцов Pd/PdO:D достоверное превышение над фоном контрольных экспериментов наблюдается в трех спектральных интервалах (см. рисунок и таблицу). Первый узкий интервал  $\Delta E_1 = 2.220 - 2.240$  МэВ (пик I) и далее интервалы  $\Delta E_2 = 3.2 - 4.2$  МэВ



Результаты вычитания  $\gamma$ -спектра системы Pd/PdO:H из  $\gamma$ -спектра системы Pd/PdO:D в условиях космического нейтронного фона — кривая 1; при облучении образцов  $\text{Cf}^{252}$ -источником нейтронов — кривая 2.

(пик II) и  $\Delta E_3 = 6.0\text{--}6.5$  МэВ (пик III). В остальных энергетических интервалах статистически значимых превышений над фоном контрольных экспериментов не обнаружено. Обращает, однако, на себя внимание “провал” по сравнению с фоном контрольных экспериментов в области энергий 4.3–4.9 МэВ. Превышение фона контрольных экспериментов над  $\gamma$ -счетом в системе Pd/PdO:D в этом интервале весьма значительно и составляет величину  $\Delta N = (6.0 \pm 1.5) \times 10^{-3}$  отсч/с (см. таблицу).

Как уже указывалось нами в [7], появление превышений над фоном в жесткой области  $\gamma$ -спектра может быть связано с вторичным  $\gamma$ -излучением ядер материалов образца, свинцовой защиты, детектора и т. п., возникающим в результате неупругого рассеяния и захвата быстрых и термализованных нейтронов космического фона. С целью проверки этого предположения нами осуществлено облучение системы детектор-образец  $\text{Cf}^{252}$ -источником нейтронов интенсивностью  $I = 280$  нс в 4 $\pi$ , прошедших 2.5 см полиэтилена, т. е. частично термализованных, и повторены эксперименты с образцами Pd/PdO:D и Pd/PdO:H в процессе

Параметры  $\gamma$ -эмиссии в интервалах превышения над фоном контрольных экспериментов ( $\Delta E_1$ ,  $\Delta E_2$ ,  $\Delta E_3$ ), а также в интервале  $\Delta E_4$ , в котором фон Pd/PdO:H превышает фон Pd/PdO:D.

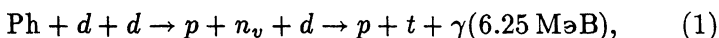
$\gamma$ -фон	Интервал			
	$\Delta E_1$	$\Delta E_2$	$\Delta E_3$	$\Delta E_4$
	(2.220–2.240) МэВ	(3.2–4.2) МэВ	(6.0–6.5) МэВ	(4.3–5.0) МэВ
$N_H \cdot 10^{-2}$ , отсч/с	$1.30 \pm 0.13$	$1.00 \pm 0.11$	$0.55 \pm 0.06$	$1.10 \pm 0.11$
$N'_H \cdot 10^{-2}$ , отсч/с	$2.45 \pm 0.18$	$2.93 \pm 0.28$	$1.12 \pm 0.12$	$2.98 \pm 0.36$
$N_D \cdot 10^{-2}$ , отсч/с	$2.13 \pm 0.15$	$1.93 \pm 0.19$	$1.13 \pm 0.11$	$0.50 \pm 0.07$
$N'_D \cdot 10^{-2}$ , отсч/с	$1.41 \pm 0.10$	$3.91 \pm 0.30$	$1.99 \pm 0.20$	$0.76 \pm 0.10$
$\Delta N \cdot 10^{-2}$ , отсч/с	$0.83 \pm 0.25$	$0.93 \pm 0.26$	$0.58 \pm 0.14$	$-(0.60 \pm 0.15)$
$\Delta N' \cdot 10^{-2}$ , отсч/с	$-(1.04 \pm 0.27)$	$0.98 \pm 0.32$	$0.87 \pm 0.24$	$-(2.22 \pm 0.43)$

$N_H$  —  $\gamma$ -счет в системе Pd/PdO:H в условиях космического нейтронного фона;  $N'_H$  — то же с Cf<sup>252</sup>-источником нейтронов;  $N_D$  — счет в системе Pd/PdO:D в условиях космического фона;  $N'_D$  — то же с Cf<sup>252</sup>-источником нейтронов;  $\Delta N = N_D - N_H$ ;  $\Delta N' = N'_D - N'_H$ .

тепловой вспышки. Измерения показали (рис. 1, кривая 2), что в области 3.2–4.2 МэВ (пик II) в условиях повышения  $\gamma$ -фона в 3 раза абсолютная величина  $\Delta N$  сохраняется без изменений (см. таблицу) по сравнению с экспериментами, выполненными в условиях космического нейтронного фона. В области 6.0–6.5 МэВ (пик III) величина  $\Delta N$  увеличивается примерно в 1.5 раза. В то же время интенсивность пика I (2.220–2.240 МэВ) резко снижается и выходит на уровень, характерный для контрольных экспериментов в условиях космического фона. При этом в области пика не только уменьшается абсолютное значение  $\Delta N$ , но и снижается скорость счета в сравнении с экспериментами без Cf-источника нейтронов. Отметим, что для контрольных образцов в интервале пика I в эксперименте с Cf-источником, наоборот, происходит рост интенсивности скорости счета. Это, по-видимому, связано с эффективным захватом тепловых нейтронов протонами в образцах Pd/PdO:H. Наибольшие же изменения происходят в области  $\Delta E = 4.6$ –5.2 МэВ спектра образцов Pd/PdO:H. В этой части  $\gamma$ -спектра величина отрицательного “эффекта” (полученная при вычитании спектра Pd/PdO:D из спектра Pd/PdO:H) возрастает более чем в 4 раза. При этом происходит сдвиг максимума  $\bar{E} = 4.6$  МэВ на 0.3 МэВ в область высоких энергий:  $\Delta \bar{E} = 4.9$  МэВ (см. рисунок). Эксперименты с облучением кристаллов DKDP Cf-источником нейтронов позволяют сделать вывод

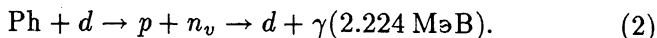
о том, что максимумы интенсивности  $\gamma$ -спектра в интервале  $\Delta E_2 = 3.2-4.2$  МэВ и  $\Delta E_3 = 6.0-6.5$  МэВ, появляющиеся в процессе тепловых вспышек в гетероструктуре Pd/PdO:D, не связаны с флуктуациями  $\gamma$ -излучения неупругого рассеяния и захвата фоновых нейтронов. Кроме того, наличие достоверного превышения над фоном в интервалах  $\Delta E_2$  и  $\Delta E_3$  в условиях повышенного  $\gamma$ -фона свидетельствует о том, что эти превышения не являются следствием случайных флуктуаций космического  $\gamma$ -фона. Действительно, увеличение  $\gamma$ -фона в описываемых участках  $\gamma$ -спектра (в 2-3 раза) с запасом перекрывает величину возможных флуктуаций космического фона, поэтому наличие пиков с максимумами  $E_2 = 3.7 \pm 0.3$  МэВ шириной  $\Gamma = 0.6 \pm 0.3$  МэВ и  $E_3 = 6.25 \pm 0.20$  МэВ шириной  $\Gamma = 0.3 \pm 0.2$  МэВ можно считать достоверно наблюдаемым.

Исходя из результатов работы [7], можно сделать вывод, что наблюдаемый в процессе тепловой вспышки в гетероструктуре Pd/PdO:D максимум  $\gamma$ -эмиссии в интервале 3.2-4.2 МэВ ( $\bar{E} = 3.7 \pm 0.3$  МэВ,  $\Gamma = 0.6 \pm 0.3$  МэВ) аналогичен пику I ( $\bar{E} = 4.0 \pm 0.3$  МэВ,  $\Gamma = 0.6 \pm 0.3$  МэВ), зарегистрированному при фазовом переходе монокристаллов DKDP через точку Кюри. (Этот пик [7] является сигнатурой реакций:  $\text{Ph} + d + d \rightarrow {}^4\text{He}^* + \gamma(3.7 \text{ МэВ})$ , где Ph — многофонное возбуждение с энергией  $W \geq 4$  МэВ). Максимумы  $\bar{E} = 3.7$  МэВ для Pd/PdO:D и  $\bar{E} = 4.0$  МэВ в DKDP [7] имеют практически одинаковое превышение над фоном контрольных экспериментов, и их абсолютная величина  $\Delta N$  не зависит от внешнего  $\gamma$ -фона. Поэтому можно полагать, что процессы образования и распада ядра  ${}^4\text{He}^*$  являются общими для большинства дейтерированных кристаллов, в которых упругая энергия высвобождается при фазовых переходах. Пик III в системе Pd/PdO:D может сопровождать образование трития в процессе следующих реакций:



где  $n_v$  — виртуальный нейтрон [8]). В этой реакции генерируется  $\gamma$ -излучение захвата нейтронов дейтеронами, имеющее энергию  $E = 6.25$  МэВ, равную энергии связи ядра трития. Отметим, что аналогичный максимум наблюдался в [7] в области 6.0-7.0 МэВ. Однако его достоверность была не велика и он почти целиком перекрывался  $\gamma$ -фоном неупругого рассеяния нейтронов от  $\text{Cf}^{252}$ -источника. И наконец, узкий пик I (2220-2240 КэВ) характерен только для системы Pd/PdO:D и не наблюдался в DKDP [7]. Возможно, что его появление обусловлено захватом виртуальных нейтронов,

образующихся, например, в (2), протонами решетки, являющимися примесью в дейтерированных гетероструктурах. В этом случае, однако, остается необъяснимым факт уменьшения интенсивности пика I до фоновых значений при облучении образцов Pd/PdO:D потоком термализованных нейтронов. Поэтому резонно предположить, что появление узкой линии  $E_\gamma = 2.225$  МэВ связано с процессом, протекающим на ядрах дейтерия. Одним из возможных вариантов объяснения мог бы служить процесс взаимодействия многофононных возбуждений с индивидуальными дейтеронами решетки (на которые не влияет поле соседних ядер) по схеме [8]:



В этом случае образующийся виртуальный нейтрон не может быть захвачен соседним ядром и будет взаимодействовать со "своим" же протоном, в результате чего выделяется энергия связи дейтерона в виде узкой  $\gamma$ -линии. В присутствии большого чистал нейтронов, при облучении гетероструктуры  $Cf^{252}$ -источником излучения  $\gamma$ -кванта не происходит, а энергия, выделяемая при захвате  $n_v$ , передается непосредственно нейтрону в решетке, который затем эмитируется из кристалла [9].

Что касается отрицательного "эффекта" в интервале 4.3–5.2 МэВ (при вычитании спектров Pd/PdO:D из спектров Pd/PdO:H), то его природа в настоящее время не ясна. Можно указать в виде гипотезы на возможную связь увеличения  $\gamma$ -счета в данном интервале для Pd/PdO:H с резонансными процессами "схлопывания" молекул воды  $H_2^{16}O \rightarrow {}^{18}Ne$  [10], образующейся при тепловой вспышке в  $O_2$ . В этой реакции, имеющей узкий резонанс, должна выделяться в виде  $\gamma$ -квантов дипольного излучения разность энергий связи ядер  ${}^{18}Ne$  и  ${}^{16}O$ , величина которой составляет  $\Delta E = 4.522$  МэВ. Для подтверждения возможности такого процесса требуются дальнейшие исследования.

Авторы благодарны В.Б. Беляеву за интерес к работе и полезное обсуждение.

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

#### Список литературы

- [1] Липсон А.Г., Лятов Б.Ф., Саков Д.М., Дерягин Б.В. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 20. С. 58.
- [2] Лятов Б.Ф., Липсон А.Г., Саков Д.М., Явич А.А. // ЖФХ. 1993. Т. 67. В. 3. С. 545.
- [3] Липсон А.Г., Лятов Б.Ф., Дерягин Б.В., Саков Д.М. // ДАН. 1993. Т. 331. № 3. С. 39.

- [4] *Yamaguchi E., Nishioka T.* // *Jap. J. Appl. Phys.* 1990. V. 29. P. L666.
- [5] *Липсон А.Г., Лятов Б.Ф., Саков Д.М., Дерягин Б.В.* // *ФТТ.* 1994. Т. 36. № 12. С. 3607.
- [6] *Липсон А.Г., Кузнецов В.А., Лятов Б.Ф. и др.* // *ЖТФ.* 1995. Т. 65. N 7. С. 68.
- [7] *Липсон А.Г., Бардышев И.И., Саков Д.М.* // *Письма в ЖТФ.* 1994. Т. 20. № 23. С. 53.
- [8] *Hagelstein P.L.* // *Trans. Fusion Tech.* 1994. V. 26. (4T). P. 461.
- [9] *Липсон А.Г., Саков Д.М.* // *Письма в ЖТФ.* 1994. Т. 20. В. 23. С. 46.
- [10] *Belyaev V.B.* // *Nucleonica.* 1995.V. 2. P. 789.

Институт  
физической химии РАН  
Москва

Поступило в Редакцию  
1 ноября 1995 г.