

05.3;12

ИЗМЕНЕНИЕ ВЕЛИЧИНЫ НЕЙТРОННОГО ПОТОКА ПРИ ЕГО ВЗАИМОДЕЙСТВИИ С КРИСТАЛЛАМИ $K(H_xD_{1-x})_2PO_4$ В ОКРЕСТНОСТИ T_C

© А.Г.Липсон, Д.М.Саков, Е.И.Саунин

В работах [1-3] было показано, что при фазовых превращениях типа сегнетоэлектрик-параэлектрик в монокристаллах KD_2PO_4 (DKDP) с высокой степенью дейтерирования (97-98%) генерируются слабые нейтронные потоки. В [4] нами было обнаружено, что абсолютная величина эффекта (за вычетом космического нейтронного фона) может быть увеличена в 10-20 раз при облучении кристаллов термализованными нейтронами от Cf^{252} -источника. Эти данные позволили сделать вывод о том, что основная доля эмитируемых нейтронов в экспериментах с DKDP обусловлена генерацией вторичных нейтронов, порожденных фоновыми. Кроме того, воспроизводимость эмиссии нейтронов в экспериментах с дейтерированными сегнетоэлектриками зависит также и от степени дейтерирования кристаллов DKDP [1,2]. Возможно, что присутствие водорода в кристалле приводит к формированию в нем молекулярных комплексов $[D^+H^-]$, обладающих аномально высоким сечением захвата нейтронов [5]. В этом случае фоновые тепловые нейтроны, бомбардирующие кристалл, в процессе перехода через точку Кюри могли бы эффективно перехватываться непосредственно в кристаллической решетке, что приведет к подавлению эмиссии нейтронов из кристалла [4].

Для проверки данной гипотезы в настоящей работе проведено исследование эмиссии нейтронов в кристаллах DKDP с различной степенью дейтерирования при переходе через T_C в условиях различного нейтронного фона. С этой целью использовали три вида кристаллов $K(H_xD_{1-x})_2PO_4$: 1) максимально дейтерированный ($x = 0.02$), $T_C = 221$ К; 2) степень дейтерирования 80% ($x = 0.2$), $T_C = 190$ К; 3) KDP ($x = 1$), $T_C = 123$ К. Контроль температурного положения сегнетоэлектрического фазового перехода осуществлялся с помощью метода термостимулированной деполяризации (ТСД) [6]. Образцы, представляющие собой плоскопараллельные пластины массой примерно 1 г, закреплялись с дозированной нагрузкой ($F = 100 \pm 10$ г) между двумя электро-

Таблица 1. Параметры эмиссии нейтронов в кристаллах $KD_xH_{1-x}PO_4$ при охлаждении в окрестности T_C в условиях космического нейтронного фона

Образец	$\Delta T, K$	$N_\phi \cdot 10^{-2}$, отсч/с	$N_{\phi\phi} \cdot 10^{-2}$, отсч/с	$\Delta N \cdot 10^{-3}$, отсч/с
KH_2PO_4	126–120	1.1 ± 0.2	1.1 ± 0.2	0.0 ± 0.3
$KD_{1.6}H_{0.4}PO_4$	185–174	1.2 ± 0.1	1.9 ± 0.1	$+(7.0 \pm 2.0)$
	170–165	1.2 ± 0.1	1.4 ± 0.1	$+(2.0 \pm 2.0)$
$KD_{1.98}H_{0.02}PO_4$	200–185	1.4 ± 0.1	2.2 ± 0.2	$+(8.0 \pm 2.0)$

Таблица 2. Параметры эмиссии нейтронов в кристаллах $KD_xH_{1-x}PO_4$ при охлаждении в окрестности T_C (облучение нейтронами от Cf^{252} -источника)

Образец	$\Delta T, K$	N_ϕ , отсч/с	$N_{\phi\phi}$, отсч/с	$\Delta N \cdot 10^{-2}$, отсч/с
KH_2PO_4	126–120	1.18 ± 0.03	1.17 ± 0.03	$-(1.0 \pm 4.1)$
$KD_{1.6}H_{0.4}PO_4$	180–172	1.02 ± 0.02	1.00 ± 0.02	$-(2.0 \pm 2.0)$
	165–153	1.05 ± 0.02	0.96 ± 0.02	$-(9.0 \pm 2.0)$
$KD_{1.98}H_{0.02}PO_4$	200–185	0.79 ± 0.02	0.94 ± 0.02	$+(15.0 \pm 3.0)$

N_ϕ — скорость счета фоновых событий; $N_{\phi\phi}$ — скорость счета в “эффекте”, $\Delta N = N_{\phi\phi} - N_\phi$.

дами. Охлаждение образцов осуществлялось в линейном режиме со скоростями 0.05–0.20 К/с в интервале температур 273–80 К. Исследования эмиссии нейтронов и спектров ТСД проводили в режиме охлаждения. Схема регистрации нейтронов описана в [4]. Для увеличения нейтронного фона и калибровки детектора использовали Cf^{252} -источник нейтронов с интенсивностью ~ 270 н/с в телесный угол 4π . Свинцовая капсула с Cf^{252} диаметром 4 см помещалась внутри полиэтиленового блока толщиной 2.5 см. Источник располагался на расстоянии $r_1 = 9$ см от поверхности образца, который, в свою очередь, находился на фиксированном расстоянии $r_2 = 6$ см от детектора нейтронов. В качестве фоновых экспериментов проводилась регистрация нейтронов в температурных интервалах вне области электрической активности кристаллов DKDP, т. е. при $T \ll T_C$ и $T \gg T_C$.

Как видно из табл. 1,2, образец 3 (KDP) не эмитирует нейтронов как в условиях космического фона, так и при облучении нейтронным потоком. Следует также отметить, что сигнал ТСД образцов KDP (Н) не изменяется при возраста-

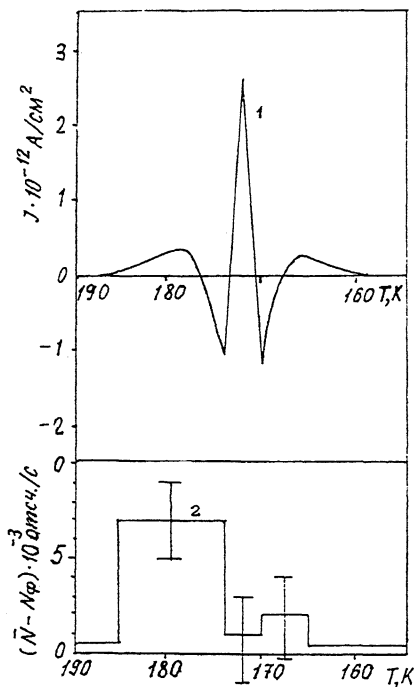


Рис. 1. Спектр ТСД — кривая 1 и гистограмма скорости счета нейтронных событий (за вычетом фона) — кривая 2 для образцов $\text{KN}_{0.4}\text{D}_{1.6}\text{PO}_4$ при охлаждении в условиях космического нейтронного фона.

нии нейтронного фона. Образец 1 (DKDP-98%) генерирует слабые нейтронные потоки (особенно ярко эмиссия выражена в моменты возникновения и исчезновения токов ТСД, т. е. по краям спектра) в условиях космического нейтронного фона. При увеличении фона нейтронов в 65 раз интенсивность эмиссии увеличивается почти в 20 раз и составляет величину $\Delta N = 0.14 \pm 0.03$ отсч./с. Подобный эффект усиления нейтронного потока наблюдался нами и ранее в образцах DKDP с высокой степенью дейтерирования [4]. При этом так же, как и в KDP отсутствует различие между спектрами ТСД облученных и необлученных образцов.

Совершенно по-иному изменяется интенсивность нейтронного потока при взаимодействии с образцами 2 (DKDP-80%). В условиях космического фона здесь имеет место достоверный положительный эффект (рис. 1, кривая 2). Как видно из рис. 1, эффект наблюдается только в температурной области начала поляризации DKDP (185–271 K) (начало сигнала ТСД) и совершенно отсутствует в момент переключения доменов (174–170 K). В области

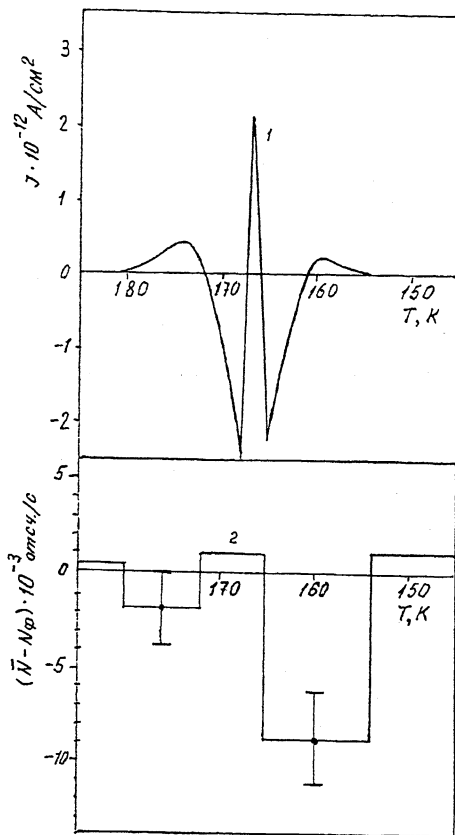


Рис. 2. Спектр ТСД — кривая 1 и гистограмма скорости счета нейтронных событий (за вычетом фона) — кривая 2 для образцов $\text{KN}_{0.4}\text{D}_{1.6}\text{PO}_4$ при охлаждении в условиях облучения термализованными нейтронами от Cf^{252} -источника нейтронов.

завершения поляризации (170–155 K) превышение над фоном статистически не достоверно. При увеличении нейтронного фона в 100 раз происходит сдвиг максимума ТСД примерно на 4 K в область низких температур (рис. 2, кривая 1). Кроме того, в области завершения электрической активности (175–160 K) наблюдается значимый отрицательный эффект (рис. 2, кривая 2 и табл. 2), свидетельствующий о поглощении термализованных полиэтиленовой защитой нейтронов кристаллом при переходе в поляризованное состояние. В области начала перехода (182–170 K) отрицательный эффект гораздо слабее (рис. 2, кривая 2) и близок к фону (табл. 2). Таким образом, частично дейтерированный

кристалл DKDP при завершении перехода в поляризованное состояние (170–155 К) поглощает порядка 2–3% (~ 8 н/с) нейтронного потока от Cf^{252} -источника нейтронов. Оценка эффективного сечения поглощения нейтронов кристаллом DKDP (80% D) в температурном интервале 175–160 К по формуле $\sigma = (1/nh) \cdot \ln(N(h)/N_0)$ (где n — концентрация ядер водорода (поглотителя), h — толщина образца, N_0 — величина падающего потока нейтронов, $N(h)$ — величина поглощенного потока) приводит к значению $\sigma = 600$ б, что более чем на 3 порядка выше сечения захвата тепловых нейтронов водородом.

Эксперименты показали, что в присутствии больших масс замедлителя на небольших расстояниях между источником и детектором (образцом) закон ослабления нейтронного потока (I) $I \sim R^{-2}$ не выполняется. Внутри полиэтиленовой защиты (ПЭ) при $R > 10$ см $I \sim R^{-1}$, тогда как при $R < 10$ см $I \sim R^{-1/n}$, где $2 < n$ (3). Это означает, что термализованные внутри ПЭ-защиты нейтроны могут многократно пересекать одну и ту же поверхность образца (до нескольких десятков раз). Внутри защиты в пространстве между источником и детектором таким образом создается “поле” тепловых нейтронов, хаотически движущихся в различных направлениях [6]. Поэтому в системе источник–кристалл зависимость $I(R)$ должна быть аналогичной той же зависимости в системе источник–детектор. Нетрудно убедиться, что при $r_1 \simeq 9$ см через поверхность кристалла $S = 2$ см² проходит поток $I = 20$ н/с. Таким образом, в использованной геометрии с учетом площади образца кристалл пересекают $\sim 7\%$ потока нейтронов от Cf^{252} -источника, из которых до 30% захватывается в кристалле в окрестности T_C при его переходе в поляризованное состояние (170–155 К).

Захват термализованных нейтронов в кристалле DKDP (80% D) [7] при облучении в окрестности T_C приводит также к значительным изменениям спектра ТСД по сравнению с аналогичным спектром, полученным в условиях космического фона. А. Для спектров ТСД образцов, облученных в процессе перехода источником нейтронов, наблюдается смещение максимумов тока примерно на 4 К в область низких температур (рис. 1,2, кривые 1). Это указывает на соответствующее уменьшение T_C облученных образцов по сравнению с T_C образцов, термоциклированных в условиях космического фона [8]. Б. Происходит увеличение тока отрицательной полярности облученных образцов. Это наглядно выражено в области 170–155 К, где суммарная величина высвобождаемого отрицательного заряда в 2 раза пре-

восходит аналогичное значение для необлученных образцов. В. Энергия активации поворота доменов в области 160–165 К для облученных образцов $\delta_1 = 3.2 \text{ эВ}$, тогда как аналогичное значение δ для необлученных образцов в области (174–170 К) составляет $\delta_2 = 2.8 \text{ эВ}$. В то же время энергия активации переупорядочения водорода (дейтерия) в облученных образцах при переходе в переполаризованное состояние $\delta_3 = 0.93 \text{ эВ}$ (165–160 К), а для необлученных образцов $\delta_4 = 1.13 \text{ эВ}$ (169–154 К).

Сдвиг T_C в область низких температур в кристаллах KDP на величину $\sim 4 \text{ К}$ свидетельствует о том, что облученный кристалл в процессе проведения измерения становится механически зажатым между электродами [9]. Причиной этого эффекта является частичное подавление спонтанной деформации в кристалле, приводящей соответственно к подавлению спонтанной поляризации на переходе в области $T > T_C$ по сравнению со “свободным” кристаллом. Очевидно, что подавление спонтанной деформации обусловлено переходом части упругой энергии, запасенной в кристалле в доменных стенках, в энергию пластических деформаций при взаимодействии с потоком термализованных нейтронов. Выделяемая в процессе фазового перехода энергия пластических деформаций расходуется на диэлектрические потери при трении доменов, генерацию заряженных дефектов, дислокаций и микротрещин в приповерхностном слое образцов DKDP. При этом наблюдается возрастание интенсивности сигнала ТСД и увеличение энергии активации переполаризации, что выражается в увеличении энергии активации переполаризации в облученном кристалле примерно на 0.4 эВ по сравнению с необлученным. С другой стороны, увеличение поверхностного заряда в процессе переполаризации облученных образцов приводит к увеличению подвижности атомов водорода и к захвату ими электронов в приповерхностном слое на стадии, предшествующей окончанию электрической активности образцов (165–150 К). Этот вывод следует из уменьшения значения энергии активации δ переупорядочения водорода облученных образцов. Избыточный водород высвобождается в решетке DKDP при разрыве водородных связей в составе диполя $\text{K}^+(\text{H}_2\text{PO}_4)_2^-$, при захвате тепловых нейтронов. Действительно, разность энергий активации переупорядочения водорода для необлученного и облученного кристаллов $\Delta = \delta_4 - \delta_3 = 0.2 \text{ эВ}$ соответствует величине энергии водородной связи O–H–O. Появление большого числа подвижных атомов водорода в решетке DKDP и последующая их ионизация ($\text{H}^0 + e \rightarrow \text{H}^-$) при взаимодействии с заряженными дефектами приводит к увеличению вероятности формирования комплексов $[\text{D}^+\text{H}^-]$

в облученных кристаллах. В результате резко увеличивается вероятность захвата нейтронов в области температур, соответствующих переходу в поляризованное состояние (табл. 2), тогда как для кристаллов, термоциклируемых в условиях космического фона отрицательных значений ΔN не наблюдается (табл. 1).

Таким образом, из данных работы следует, что процесс эмиссии нейтронов в сегнетоэлектрических кристаллах DKDP (H_xD_{1-x}) целиком зависит от содержания в них дейтерия и водорода. Возможность генерации нейтронов в таких образцах определяется балансом усиления (в DKDP при $x \rightarrow 0$) и захвата ($x \geq 0.2$) фонового потока термализованных нейтронов, взаимодействующих с кристаллом.

Авторы благодарны А.В. Стрелкову за ценные замечания.

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

Список литературы

- [1] Липсон А.Г., Саков Д.М., Калинин В.Б., Дерягин Б.В. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 16. С. 90.
- [2] Липсон А.Г., Саков Д.М., Саунин Е.И. и др. // ЖЭТФ. 1993. Т. 103. В. 6. С. 2142.
- [3] Дерягин Б.В., Андрианкин Е.И., Липсон А.Г. и др. // ДАН. 1994. Т. 334. № 3. С. 291.
- [4] Липсон А.Г., Саков Д.М. // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. В. 23. С. 46.
- [5] Cerofolini G.F., Voara C., Agosteo S., Para A.F. // Fusion Tech. 1993. V. 23. P. 465.
- [6] Гуревич И.И., Тарасов Л.В. Физика нейтронов низких энергий. М.: Наука, 1965. 386 с.
- [7] Kozima H. // Il Nuovo Cimento A. 1994. V. 27. P. 1781.
- [8] Липсон А.Г., Саков Д.М., Громов В.В. // Письма в ЖЭТФ. 1992. Т. 55. № 7. С. 402.
- [9] Иона Ф., Ширани Д. Сегнетоэлектрические кристаллы. М.: Мир, 1965. 556 с.

Институт
физической химии РАН
Москва

Поступило в Редакцию
1 ноября 1995 г.