

05.3; 12

© 1992

ЭМИССИЯ НЕЙТРОНОВ В МОНОКРИСТАЛЛАХ KD_2PO_4 ,
СТИМУЛИРОВАННАЯ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИМ ФАЗОВЫМ
ПЕРЕХОДОМА.Г. Липсон, Д.М. Саков,
В.Б. Калинин, Б.В. Дерягин

В настоящее время проводятся активные экспериментальные и теоретические исследования аномальных ядерных эффектов в дейтерированных металлах, в частности в Ti , Pd и др. Достоверно установлено наличие эмиссии нейтронов при насыщении титана дейтерием из газовой фазы и при электролизе D_2O на титановых и палладиевых катодах [1-4].

Однако до сих пор подавляющее большинство работ по инициированию реакций „холодного ядерного синтеза“ (ХЯС) было выполнено на металлических дейтеридах. При этом полагали, что именно в таких системах будут создаваться условия для протекания dd -реакций непосредственно в кристаллической решетке образцов. Последнее обстоятельство связывали с тем, что именно в процессе дейтерирования металлов в неравновесных условиях возникают: 1) области с высокой концентрацией дейтерия; 2) области с высокой концентрацией упругой энергии, высвобождающейся при фазовых переходах ($\alpha \rightarrow \beta$); 3) участки, в которых может осуществляться электронное экранирование кулоновского потенциала ядер дейтерия. Совокупность предположений (1-3) обычно используют для описания процессов ХЯС в дейтеридах металлов [5-7]. Поскольку условия (1-3) выполняются далеко не во всех случаях (зависят от концентрации дейтерия, температуры, дефектности образцов и т.п.), воспроизводимость результатов по ХЯС в таких системах оставляет желать много лучшего. Кроме того, контролировать параметры образцов по всему их объему практически невозможно.

Вместе с тем, дейтерированные объекты с контролируемыми параметрами указанного выше типа существуют. В качестве таких объектов могут выступать дейтерированные монокристаллы, имеющие высокую концентрацию дейтерия, остающуюся неизменной в процессе эксперимента, в которых реализуются обратимые фазовые переходы типа сегнетоэлектрик-параэлектрик, сегнетоэлектрик-ионный проводник и т.д. В данной работе мы продемонстрируем наличие воспроизводимой эмиссии нейтронов в охарактеризованных сегнетоэлектрических монокристаллах KD_2PO_4 ($DKDP$), реализующейся вблизи температуры Кюри (T_C), в процессе термоциклирования образцов.

Использовались образцы KD_2PO_4 со степенью дейтерирования 98 %, вырезанные из монокристалла в направлении (110) с массой 0.5 и 0.8 г. Образцы с $T_c \approx 221 \pm 1$ К имели удельное электросопротивление на постоянном напряжении $V = 100 \text{ В} \cdot 10^{11} \text{ см} \cdot \text{см}$ и концентрацию дейтерия $N_D \approx 2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$. В качестве контрольных были использованы монокристаллические образцы KH_2PO_4 (KDP) с $T_c = 123$ К той же массы. Образцы помещались в изолированный латунный цилиндр, оснащенный пружинным прижимом и термопарой медь-константан. Скорость нагрева (охлаждения) образцов была фиксированной и составляла $2 \cdot 10^{-2}$ К/с. Погрешность термопары в исследованном температурном интервале составляла ± 0.3 К. Для изучения сегнетоэлектрического перехода, определения T_c и оценки величины спонтанной поляризации образцов был применен метод термостимулированной деполяризации (ТСД) с использованием установки, описанной в [8].

Регистрация нейтронов осуществлялась с помощью блока из 8 пропорциональных счетчиков $NWJ-62$, имеющего эффективность 3.0 ± 0.5 % согласно калибровочным измерениям с Cf^{252} - источником нейтронов интенсивностью $6 \cdot 10^2$ н/с. Естественный нейтронный фон, измеренный за большие промежутки времени (до, между и после экспериментов) составил 0.012 ± 0.004 отсч./с (колебания фона не превышали 2%). Более подробно блок регистрации нейтронов описан в [3,4]. В процессе измерений осуществлялся также мониторинг формы и длительности нейтронных импульсов, поступающих на детектор.

Для повышения степени достоверности экспериментальных данных большое внимание было уделено проведению контрольных экспериментов. Всего было использовано 4 вида таких экспериментов (как с KDP , так и с $DKDP$), включающих измерения нейтронного фона в следующих случаях: а) пустой криостат - термоциклирование в температурном интервале $219 \div 223$ К; б) монокристаллы KDP - термоциклирование в интервале $121 \div 125$ К; в) монокристаллы KDP - термоциклирование в интервале $219 \div 223$ К; г) монокристаллы $DKDP$ - термоциклирование в интервалах $210 \div 215$ К и $225 \div 230$ К (т.е. вне интервала T_c). Всего было выполнено для каждого вида контрольных экспериментов не менее, чем по 50 циклов нагрев-охлаждение. Полученные данные представлены в таблице. Счет нейтронов в процессе измерений (а-г) в пределах достоверности не превышает значений естественного нейтронного фона. В процессе же измерений на $DKDP$ - образцах в окрестностях T_c ($219 \div 223$ К) было обнаружено наличие существенного превышения над уровнем космического фона. При этом основная доля регистрируемых нейтронных событий (контролируемых одновременно по амплитуде, форме и длительности импульса) наблюдается вблизи температурных положений 221 и 222 К. Как видно из таблицы, за время, соответствующее 100 циклам нагрев-охлаждение, для температурных интервалов 221 ± 0.3 К и 222 ± 0.3 К эффект, за вычетом естественного нейтронного фона, с учетом эффективности детектора, равен 0.75 ± 0.16 н/с, что превосходит величину

чину естественного фона в 3 раза (15 Г). Эмиссия нейтронов носит характер спорадических вспышек (30–100 нейтронов на вспышку), наблюдаемых при прохождении интервала (221–222) ± 0,3 К. В связи с тем, что в наших экспериментах из-за наличия погрешности термопары интервал времени экспозиции искусственно завышался, очевидно, что при более четкой регистрации температуры величина эффекта может значительно возрасти. Следует отметить высокую воспроизводимость эффекта, составляющую 90–95%, а также наблюдаемую пропорциональность увеличения счета нейтронов при увеличении массы образца (при увеличении $m_{обр}$ в 1,6 раза эффект увеличивается примерно в 1,5 раза).

Таким образом в монокристаллах $DKDP$ при термоциклировании в окрестностях T_C наблюдается генерация нейтронов (в виде вспышек). Данный вывод подтверждается экспериментами по ТСД (см. рисунок, а), в которых наблюдается корреляция температур максимумов тока ТСД с температурами, при которых скорость счета нейтронов в режиме термоциклирования максимальна (см. рисунок, б). Наличие в спектрах ТСД $DKDP$ (а равно и KDP) двух примерно симметричных пиков разной полярности связано, в свою очередь, с изменением знака поляризации за счет двух последовательных поворотов диполей [9] в окрестностях T_C при переключении доменных стенок.

Рассмотрим возможные физические причины эмиссии нейтронов в KDP -подобных дейтерированных сегнетоэлектриках, стимулированные фазовыми переходами. Известно, что протоны (дейтероны) в решетке KDP статистически заселяют одну из двух кристаллографических позиций, отстоящих друг от друга на $0,45 \text{ \AA}$ [10]. Эти позиции отделены друг от друга невысоким потенциальным барьером высотой порядка $0,5 \text{ эВ}$ (при рассмотрении в рамках феноменологической модели Ландау – симметричного двухминимумного потенциала [11]).

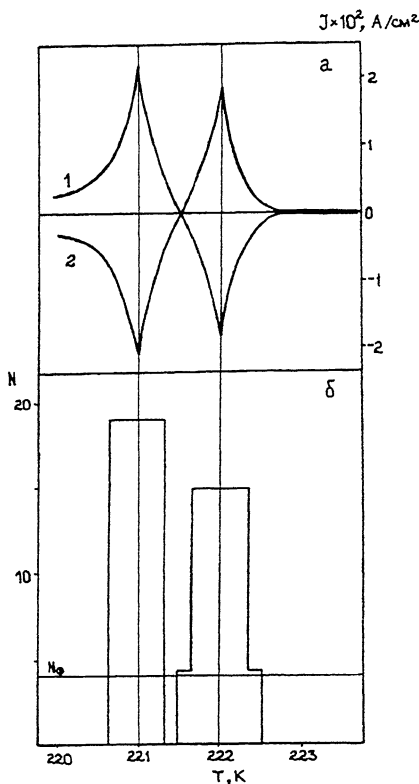
В процессе фазового перехода сегнетоэлектрик–параэлектрик возникает отличная от нуля вероятность одновременного заселения дейтеронами обеих кристаллографических позиций. Это связано с тем, что на поверхности доменов существует избыток упругой энергии доменных стенок, достигающих 40 эрг/см^2 [10]. Вследствие этого движение дейтеронов при фазовом переходе типа порядок – беспорядок (в модели протон–решеточной связи) оказывается сильно связанным оптическими фононами, т.е. колебаниями решетки $K - PO_4$ вдоль оси c [12]. Таким образом, одним из возможных путей заселения дейтеронами близкорасположенных позиций в двухминимумном потенциале следует считать фононные флуктуации, реализующиеся при повороте доменных границ [11]. В качестве другой возможной причины одновременного заселения близкорасположенных кристаллографических позиций следует, по-видимому, считать сильное электрическое поле, возникающее при фазовом переходе параэлектрик–сегнетоэлектрик. Действительно, поскольку величина P_s в $DKPP$ составляет $\sim 5 \cdot 10^{-6} \text{ Кл/см}^2$, то величина напряженности электрического поля доменной стенки может достигать $\sim 6 \cdot 10^7$

Т а б л и ц а

Параметры эмиссии нейтронов в кристаллах KD_2PO_4 и KH_2PO_4 при термоциклировании

№	Система	$\Delta T, K$	\bar{N} (отсч./ч)	n_D (Н/с)	n (Н/с)	$L(\sigma)$
1	Пустой криостат	219-223	0.012 ± 0.005	0.14	-	-
2	KH_2PO_4	121-125	0.011 ± 0.004	0.14	-	-
3	KH_2PO_4	219-223	0.012 ± 0.005	0.14	-	-
4	KD_2PO_4	210-215	0.013 ± 0.004	0.14	0.03 ± 0.04	< 1
5	KD_2PO_4	225-230	0.012 ± 0.005	0.14	-	-
6	KD_2PO_4 ($m = 0.5 r$)	219-223	0.024 ± 0.005	0.10	0.40 ± 0.18	8
7	KD_2PO_4 ($m = 0.8 r$)	219-223	0.031 ± 0.006	0.10	0.61 ± 0.19	11
8	KD_2PO_4 ($m = 0.5 r$)	221 ± 0.3 222 ± 0.3	0.035 ± 0.006	0.10	0.75 ± 0.16	15

Здесь \bar{N} - усредненное за время измерения $t \approx 6 \cdot 10^3$ с число отсчетов (эффект без вычета фона); $n_D = 2n\phi / E^2 t$ ($n\phi = 0.012 \pm 0.004$ отсч/с; E - эффективность детектора); $n = (N - n\phi) / E$ - величина эффекта за вычетом фона; $L(\sigma)$ - превышение над фоном в единицах σ (число стандартных отклонений выше уровня фона).



Спектры ТСД кристалла KD_2PO_4 : 1 - охлаждение образца; 2 - то же при нагреве (а). Счет нейтронов (N) при термоциклировании образцов KD_2PO_4 (100 циклов) в окрестностях T_C (б).

В/см. С учетом типичного значения толщины доменных стенок в $DKDP$ [12] энергия дейтерона составит $\sim 10-20$ эВ, что оказывается достаточным для преодоления кулоновского барьера при заселении вакантной позиции в двухминимумном потенциале. При сближении дейтеронов на указанное расстояние возможно протекание dd -реакции с эмиссией нейтронов по туннельному механизму, характеризующееся выходом $\lambda_{dd} \sim 10^{-20} - 10^{-23} \text{ с}^{-1}$ на пару дейтронов [1], что отвечает модели „металлического“ дейтерия [13]. Именно такой выход нейтронов ($10^{-20} - 10^{-21} \text{ с}^{-1}$) и наблюдается в нашем случае. Наряду с указанными причинами инициирования dd -реакции в $DKDP$ определенный вклад может вносить и упругая энергия доменных стенок, при концентрировании которой возникают условия протекания „когерентных“ ядерных реакций [14]. Для более детального выяснения механизма наблюдаемого эффекта необходимы дальнейшие исследования.

В заключение авторы считают своим приятным долгом выразить искреннюю признательность А.А. Волкову за предоставленные мо-

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Jones S.E., Palmer E.P., Czirr J.B. et al. // Nature. 1989. V. 338. P. 737-739.
- [2] De Ninno A., Frattolillo A., Lollobatista G. et al. // Europhys. Lett. 1989. V. 9. P. 221-224.
- [3] Derjaguin B.V., Lipson A.G., Kluev V.A. et al. // Nature. 1989. V. 341. P. 492.
- [4] Липсон А.Г., Саков Д.М., Дерягин Б.В. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 49. № 11. С. 588-590.
- [5] Царев В.А. // УФН. 1990. Т. 16. № 11. С. 1-53.
- [6] Schwinger J. // Progr. Theor. Phys. 1991. V. 85. N 4. P. 711-712.
- [7] Давыдов А.С. // УФЖ. 1989. Т. 34. № 9. С. 1295-1297.
- [8] Липсон А.Г., Саков Д.М., Громов В.В. // Письма в ЖЭТФ. 1992. Т. 55. В. 7. С. 402-406.
- [9] Darinski V.M., Sidorkin A.S. // Ferroelectrics. 1987. V. 71. P. 269-279.
- [10] Nelmes R.J., Tun Z., Kuchs W.F. // Ferroelectrics. 1987. V. 71. P. 125-141.
- [11] Nelmes R.J. // Ferroelectrics. 1987. V. 71. P. 87-123.
- [12] Лайнс М., Гласс А. // Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. М.: Наука, 1981. 736 с.
- [13] Horowitz C.J. // Phys. Rev. C. 1989. V.40. P. R1555.
- [14] Hagelstein P.L. // In: „Anomalous nuclear effects in deuterium solid systems". Ed. by Jones S.E. et al. AIP Conf. Proc. N 228. N.Y. 1991. P. 734-781.

Институт физической химии
РАН, Москва

Поступило в Редакцию
22 июля 1992 г.