

© 1992

ПАРАЛЛЕЛЬНАЯ РЕГИСТРАЦИЯ ИМПУЛЬСНОГО ТЕПЛОВОГО ЭФФЕКТА И НЕЙТРОННЫХ ВСПЫШЕК В ГЕТЕРОСТРУКТУРЕ  $Au/Pd/PdO$ , НАСЫЩЕННОЙ ДЕЙТЕРИЕМ ЭЛЕКТРОХИМИЧЕСКИМ ПУТЕМА.Г. Л и п с о н, Б.Ф. Л я х о в, Б.В. Д е р я г и н,  
Д.М. С а к о в

В работе [1] нами было показано, что в насыщенной водородом электролитическим путем гетероструктурах  $Pd/PdO$  наблюдается воспроизводимый импульсный тепловой эффект, сопровождаемый биаксиальным изгибом образцов. Было установлено, что величина теплового эффекта примерно в 2 раза превосходит величину энергии, затраченной на проведение электролиза. Кроме того, исследование кинетики наводороживания показало, что водород в гетероструктуре накапливается преимущественно в тонком приповерхностном слое толщиной  $10^{-6}$  см с образованием соединения  $PdH_{30}$ .

Вместе с тем, использование чужеродных оксидных слоев на  $Pd$  с целью повышения выхода продуктов „холодного ядерного синтеза“ (ХЯС) применялось ранее в [2, 3] при насыщении  $Pd$ -образцов дейтрием из газовой фазы. В частности, в [3] было найдено, что при использовании массивных образцов  $Pd$ , покрытых с одной стороны  $Au$ , а с противоположной стороны окислом  $Mn$  наблюдается тепловая вспышка (разогрев поверхности образца до температуры  $+800$  °С) и нейтронный всплеск ( $\sim 10^6$  нейтронов в течение нескольких секунд). Однако в этой работе имела место крайне низкая воспроизводимость результатов, поэтому невозможно было сделать заключение о природе наблюдаемых процессов.

В связи с вышеизложенным, в настоящей работе исследована взаимосвязь тепловых и ядерных процессов в насыщенной дейтрием гетероструктуре  $Au/Pd/PdO$  и показало, что прямая корреляция между ними отсутствует.

В работе использовались образцы холоднокатанной  $Pd$ -фольги толщиной 30 мкм (содержание  $Pd$ -99.9%) с площадью рабочей стороны  $2.5$  см<sup>2</sup>. После прокатки образцы проходили отжиг в вакууме при температуре  $600$  °С в течение двух часов с последующим медленным ( $60$  °С/час) охлаждением до комнатной температуры. Затем образцы подвергались кратковременному отжигу в кислородном пламени при температуре  $1000$  °С, в результате чего происходило формирование слоя  $PdO$  на его поверхности толщиной  $\sim 200$  Å [1]. Далее одна из поверхностей покрывалась тефлоновым лаком, а на другую сторону из цианистого электролита наносилось золотое покрытие толщиной  $\sim 5000$  Å. Затем лак удалялся и обра-

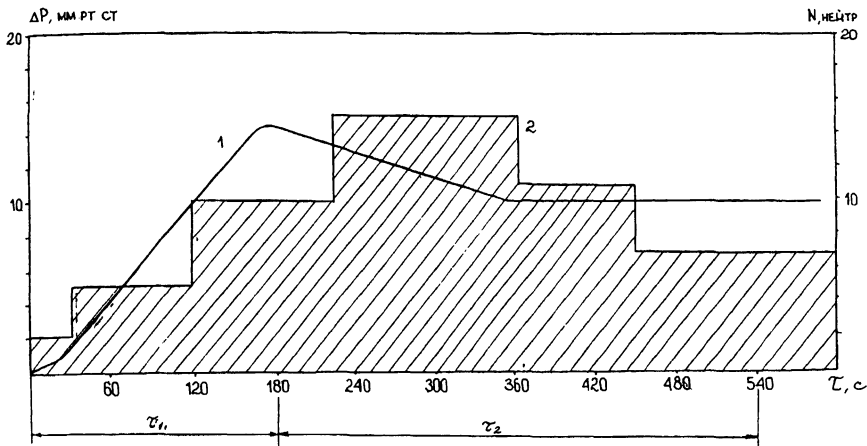


Рис. 1. Кинетика изменения давления (1) и эмиссия нейтронов (2) в образце  $Au/Pd/PdO$ , насыщенном дейтерием ( $j=20$  мА/см<sup>2</sup>,  $t=30$  мин).

зец повторно отжигался при температуре 400 °С в течение 4 часов с целью очистки образцов от обычного водорода, который мог проникнуть в него в процессе золочения.

Электролиз проводился в ячейке замкнутого типа с разделенным катодным и анодным пространствами. Анод — Pt. В качестве электролита использовали 1M раствор NaOD в  $D_2O$ . Плотность тока варьировалась в пределах 10–30 мА/см<sup>2</sup>. Регистрация теплового эффекта по окончании электролиза проводилась в аналитическом пространстве газового термометра, конструкция которого описана в [1]. Регистрация нейтронов осуществлялась с помощью блока из 7 пропорциональных счетчиков нейтронов, расположенного на расстоянии 2 см от аналитического объема газового термометра с применением пассивной защиты из полиэтилена и кадмия. Согласно калибровочным измерениям с источником нейтронов  $C_f^{252}$  интенсивностью  $5 \cdot 10^2$  н/с эффективность детектора в данной геометрии составила  $3.0 \pm 0.5\%$ . Более подробно схема регистрации нейтронов описана в [4, 5]. Значение естественного фона за большие промежутки времени составило  $N_{\text{ф}} = 0.012 \pm 0.003$  отсч/с (флуктуации фона не превышали  $2\sigma$ ).

Экспериментальная процедура была следующей: после электролиза, длящегося в оптимуме  $t=10-20$  мин (при  $j=20$  мА/см<sup>2</sup>) образец промывался в чистой  $D_2O$  и затем после высушивания фильтровальной бумагой помещался в аналитический объем газового термометра. Далее процессы регистрации нейтронов и теплового эффекта велись параллельно.

Контрольные эксперименты, проведенные на образцах  $Au/Pd$  без оксидного слоя (то есть не отожженные в кислородном пламени), показали отсутствие как теплового эффекта, так и эмиссии нейтронов, превышающей фоновые значения. В этом случае наблюдается лишь слабое увеличение в течении длительного времени давления в системе ( $\Delta P \sim 8$  Тор).

Другой вид контрольных экспериментов по эмиссии нейтронов был проведен на электролитически дейтерированных образцах  $Au/Pd/PdO$ , помещенных в  $D_2O$ . На таких образцах эмиссия нейтронов и тепловой эффект также отсутствовали.

В дальнейшем работа велась только на образцах  $Au/Pd/PdO$ , приготовленных по вышеописанной процедуре. При этом тепловой эффект был максимален при плотности тока электролиза  $j=20$  мА/см<sup>2</sup> и времени электролиза 15–20 минут. При больших временах электролиза теплового эффекта не наблюдается, а эмиссия нейтронов весьма слабая и растянута во времени ( $N=0.018$  отсч/с (рис. 1)). Значения интегральной интенсивности эмиссии нейтронов измерялись каждые 30 с. После 15 минут экспозиции в камере газового термометра в образцах остается 80–90% дейтерия (согласно анализу на термодиффузионной установке). Как показано в [1], при  $t \geq 20$  минут происходит прорыв водорода (дейтерия) в объем образца, в результате чего его концентрация на поверхности резко падает. При меньших временах электролиза тепловой эффект и эмиссия нейтронов уменьшаются примерно пропорционально времени электролиза. На рис. 2 представлены результаты измеренных параллельно величин тепловой вспышки и нейтронной эмиссии ( $j=20$  мА/см<sup>2</sup>,  $t=18$  мин). Отметим, что уже в процессе проведения электролиза наблюдается растущий во времени односторонний изгиб образца, обусловленный процессом проникновения дейтерия в решетку  $Pd$ . После промывки и сушки образца в период, предшествующий началу резкого увеличения давления в аналитическом объеме газового термометра ( $\tau_1$ ), имеют место сильные деформации, приводящие к разгибанию  $Pd$ -образца. При этом в 30–60 секунд до начала резкого подъема давления (примерно в 20% случаях) регистрируются вспышки нейтронов  $3-5 \cdot 10^2$  нейтронов в интервале  $\sim 1$  мс [6, 7]. Затем в течение порядка  $\tau_2=30$  секунд наблюдается практически фоновые значения скорости счета нейтронов. В это время имеет место стремительный рост давления, связанный с выделением тепла [1], длящийся  $\sim 7-10$  с, за которым следует затяжной спад ( $\tau_3=40$  с), приводящий к вакуумированию аналитического объема, вследствие расхода кислорода на реакцию с выделяющимся дейтерием. Одновременно наблюдается парообразование в объеме газового термометра, свидетельствующее об образовании паров  $D_2O$ , а остаточные незначительные остаточные деформации в образце  $Au/Pd/PdO$ . На затяжном спаде также регистрируется эмиссия нейтронов, однако в данном случае мощные вспышки отсутствуют, то есть эмиссия носит более равномерный характер. Усредненные данные по тепловому эффекту и эмиссии нейтронов представлены в таблицах 1 и 2. После

Т а б л и ц а 1

Усредненные значения изменения давления ( $\Delta P$ ) и интенсивности эмиссии нейтронов на образцах  $Au/Pd/PdO$  с тепловым эффектом ( $j=20$  мА/см<sup>2</sup>,  $\tau_1=18$  минут)

Параметр/Период	$\tau_1$	$\tau_2$	$\tau_3$
$\Delta P$ (мм рт. ст.)	0-20	20-110	110-(-30)
$\bar{N}$ (отсч./с)	$0.040 \pm 0.003$	$0.03 \pm 0.003$	$0.024 \pm 0.002$
$n$ (н/с)	$0.9 \pm 0.10$	$0.02 \pm 0.602$	$0.25 \pm 0.11$
$\mathcal{L}(\sigma)$	11.5	-	10.2
$t$ (с)	3850	1000	7820

Т а б л и ц а 2

Усредненные значения изменения давления и интенсивности эмиссии нейтронов на образцах  $Au/Pd/PdO$  в отсутствие теплового эффекта ( $j=20$  мА/см<sup>2</sup>,  $\tau_1=30$  мин)

Параметр/Период	$\tau_1$	$\tau_2$
$\Delta P$ (мм рт. ст.)	0-14	14-10
$\bar{N}$ (отсч./с)	$0.017 \pm 0.003$	$0.019 \pm 0.004$
$n$ (н/с)	$0.15 \pm 0.10$	$0.21 \pm 0.09$
$\mathcal{L}(\sigma)$	4.5	7.5
$t$ (с)	4120	7385

П р и м е ч а н и е.  $\bar{N}$  - усредненное за время измерений  $\tau$  число отсчетов в секунду;  $n = (\bar{N} - n_{\phi})/E$  - величина эффекта за вычетом фона  $n_{\phi}$  ( $E$  - эффективность детектора);  $\mathcal{L}(\sigma)$  - величина превышения эффекта над фоном в единицах  $\sigma$  ( $\sigma$  - стандартное отклонение от уровня фона).

того как образец полностью теряет дейтерий ( $\tau=4-5$  мин) интенсивность скорости счета нейтронов выходит на фоновый уровень.

Всего было проделано 50 экспериментов, в которых наблюдались тепловые вспышки. В среднем их интенсивность составила  $Q=21.5 \pm 6.2$  кал/см<sup>2</sup> Pd, что примерно в 2-3 раза превосходит энергию, переданную образцу при электролизе (8-10 кал/см<sup>2</sup>).

После примерно 15-20 циклов электролиза образец перестает давать тепловую вспышку, а кинетика эмиссии нейтронов и изменения давления стремятся к виду, представленному на рис. 1. Восстановить способность образца давать тепловую вспышку можно путем отжига его в вакууме  $10^{-6}$  Тор при температуре 400 °С в течение 2 часов с последующим медленным охлаждением.

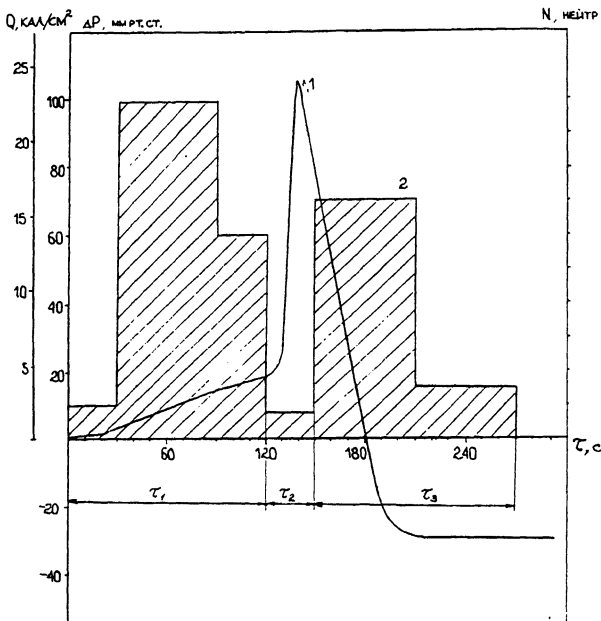


Рис. 2. Тепловой эффект (1) и эмиссия нейтронов (2) в образце  $Au/Pd/PdO$ , насыщенном дейтерием ( $j = 20 \text{ mA/cm}^2$ ,  $t = 18 \text{ мин}$ ).

Таким образом, в электрохимически дейтерированных образцах  $Au/Pd/PdO$  наблюдаются тепловая вспышка и эмиссия нейтронов, предшествующая вспышке и сопровождающая спад давления в системе. При этом образец подвергается непрерывным деформациям, обусловленным наличием градиента концентрации дейтерия (то есть преимущественным скоплением его на поверхности  $PdO$ ). Обращает на себя внимание отсутствие эмиссии нейтронов в момент максимального разогрева образца (максимальное увеличение давления) (рис. 2, табл. 1). Это свидетельствует, на наш взгляд, об отсутствии прямой связи между процессами ХЯС и тепловыделением, поскольку при наличии последней максимальному тепловыделению с необходимостью должен соответствовать максимальный выход продукции  $dd$ -реакции [8]. Действительно, как показано нами в [1], импульсное тепловыделение в наводороженной гетероструктуре  $Pd/PdO$  обусловлено рекомбинацией атомов водорода (дейтерия) в молекулы с последующим их окислением до  $H_2O(D_2O)$ . Этот процесс напрямую никак не связан с ХЯС. С другой стороны, во временные интервалы, предшествующие тепловой вспышке, при наличии деформаций в образце происходит концентрирование упругой энергии на микрополостях (дислокациях) с высокой концентрацией дейтерия (близкой к металлической [1]), находящихся на межфазной границе  $Pd/PdO$ . При этом в приповерхностном слое образца возможно про-

теkanie импульсного ХЯС, который имеет место при поглощении упругой энергии в дейтеридах металлов [8]. Аналогично на стадии спада в интервале  $\tau_3$  (рис. 2) будет происходить более слабая затяжная эмиссия нейтронов, обусловленная дейтерием в одиночных микрополостях все еще присутствующих на поверхности Pd, поскольку остаточные деформации наблюдаются в образце вплоть до полного ухода из него дейтерия.

#### С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Л я х о в Б.Ф., Л и п с о н А.Г., С а к о в Д.М., Я в и ч А.А. // ЖФХ. 1993. Т. 67. № 3. С. 720.
- [2] C l a y t o r T.N., S e e g e r P.A., T o h - w e r P.K. et al. Proc. Work Shop on Anomalous Effects in Deuterated Materials, Washington DC, 1989. P.31
- [3] Y a m a g u c h i E., N i s h i o k a T. In: Anomalous nuclear effects in deuterium / Solid systems, ed by S.E. Jones et al., AJP Conf. Proc. N 228, New York, 1991, P. 354-371.
- [4] Л и п с о н А.Г., С а к о в Д.М., К л ю е в В.А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 49. № 11. С. 588-590.
- [5] L i p s o n A.G., K l u e v V.A., M o r d o v i n V.M. et al. // Phys. Lett. A. 1992. V. 166. P. 43-46.
- [6] Л и п с о н А.Г., Л я х о в Д.М., Д е р я г и н Б.В. и др. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. В. 21. С. 33-37.
- [7] M e n l o v e H.O., F o u l e r M.M., G a r - c i a E. et al. LANZ Preprint LA-UR89-1974.
- [8] Л и п с о н А.Г., К у з н е ц о в В.А., С а к о в Д.М., Д е р я г и н Б.В. // ДАН. 1992. Т. 323. № 6. С. 1097-1101.

Институт физической химии РАН

Поступило в Редакцию  
3 октября 1992 г.