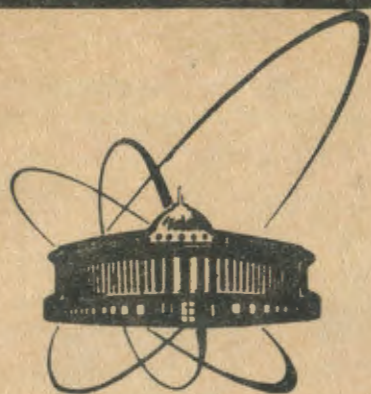


91-200



сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
Дубна

Д13-91-200

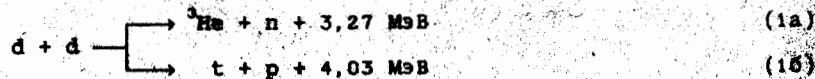
В. И. Артюхов*, В. М. Быстрицкий, А. И. Гилев,
Н. Илиева-Соколинова, А. И. Калинин,
А. Н. Перевезенцев*, Л. А. Ривкис*, Ю. В. Седых,
С. И. Сорокин*, В. А. Столупин, А. В. Стрелков,
В. В. Токменин, Н. Н. Хованский

КОРРЕЛЯЦИОННЫЕ ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО ПРОВЕРКЕ
СУЩЕСТВОВАНИЯ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО
ЯДЕРНОГО СИНТЕЗА В ДЕЙТЕРИДАХ ТИТАНА
И ЦИРКОНИЯ

*Московский химико-технологический институт
им. Д. И. Менделеева

1991

До настоящего времени, после сообщения в марте 1989 года об открытии явления низкотемпературного ядерного dd -синтеза



(НТС) на катодах из Pd и Ti в процессе электролиза тяжелой воды^{/1,2/}, выполнено достаточно большое количество экспериментальных и теоретических работ (>200), посвященных исследованию данного явления (см. обзор^{/3/}). В экспериментах по исследованию НТС применялись различные методики.

Наиболее многочисленная группа экспериментов выполнена с использованием методики регистрации нейтронов реакции (1a) как с применением жидких и твердых сцинтилляторов (NE-213, NE-102A, стильбен, пластик), так и с детекторами тепловых нейтронов на основе BF_3 , ${}^3\text{He}$ ^{/4,5,6/}. В некоторых работах была применена методика быстро-медленных совпадений с использованием обоих типов нейтронных детекторов^{/5,9,10,11/}.

Большая часть экспериментов, выполненных с помощью методики регистрации нейтронов, свидетельствует о наблюдении эмиссии нейтронов реакции (1a) из Ti и Pd (насыщенных дейтерием как в электролите, так и в газовой среде) в виде нейтронных вспышек (импульсный характер испускания нейтронов в течение коротких временных интервалов от десятков микросекунд до нескольких минут^{/5,7,8,11/}), либо свидетельствует о существенном превышении выхода нейтронов на уровне Джонса^{/2/} (уровень Джонса соответствует скорости реакции dd -синтеза в Pd порядка $\approx 10^{-23} \text{ с}^{-1}$) над уровнем фона^{/4,6,8,9,12,13,14,15,16/}. Однако имеется группа экспериментов, выполненных с высокой точностью^{/17,18,22/}, в которых явление НТС не наблюдалось. Причем в данных работах приведены оценки верхней границы скорости реакции dd -синтеза, которые существенно меньше уровня Джонса. Такое различие в результатах, полученных в первой и второй группе экспериментов, можно, конечно, пытаться объяснить за счет спорадического и невоспроизводимого характера явления НТС^{/3/}, тем не менее сам факт расхождения результатов заслуживает дальнейшего более тщательного изучения существующего дисбаланса.

Анализируя наши ранние работы^{/17,18/} по исследованию реакций

НТС в Pd и Ti, можно предположить, что из-за низкой эффективности регистрации нейтронов экспериментальной установкой ($\approx 3 \cdot 10^{-3}$) мы, в принципе, могли не наблюдать короткие по времени нейтронные "вспышки".

Принимая во внимание результаты экспериментов^{/23,24/} по поиску корреляций между моментами появления нейтронов реакций НТС и сигналами с датчиков акустической и электромагнитной эмиссии (акустическая и электромагнитная эмиссия возникает при образовании трещин в образцах из Ti, Pd и др. металлов группы В в процессе сорбции и десорбции дейтерия^{/25/}, а также при крио- и термоциклировании образцов), крайне необходимо независимым образом проверить ускорительную модель^{/26,27/}, предложенную для объяснения механизма НТС.

В связи с этим нами выполнен эксперимент по поиску микроструктуры возможных нейтронных "вспышек" от реакций dd -синтеза в образцах из Ti и Zr, а также возможных корреляций между моментами регистрации нейтронов и появления сигналов с акустических датчиков, установленных на исследуемых образцах.

ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Экспериментальная установка

На рис.1 приведен схематический чертёж экспериментальной установки. Регистрация нейтронов производилась с помощью 33 детекторов (BF_3) 2, расположенных вокруг мишени 1. Для замедления нейтронов до тепловых энергий использовался гранулированный полиэтилен 3. Мишень 1 и нейтронные детекторы 2 находились внутри бокса из борированного полиэтилена 4. Толщина стенок бокса составляла ≈ 20 см. Это позволило существенно (примерно на два порядка) уменьшить фоновую загрузку детекторов, связанную с внешним нейтронным облучением. Для защиты спектрометрических каналов нейтронных детекторов и акустического датчика от возможных электромагнитных наводок использовались экраны из меди 5 и железа 6, расположенные внутри бокса 4 и окружающие полностью всю регистрирующую аппаратуру, находящуюся в нем (нейтронные детекторы с предусилителем, акустический датчик с предусилителем).

На рис.2 приведен чертёж газовой мишени. Мишень включала в себя: цилиндр из нержавеющей стали 1 ($\varnothing 20$ мм, $l = 140$ мм, толщина

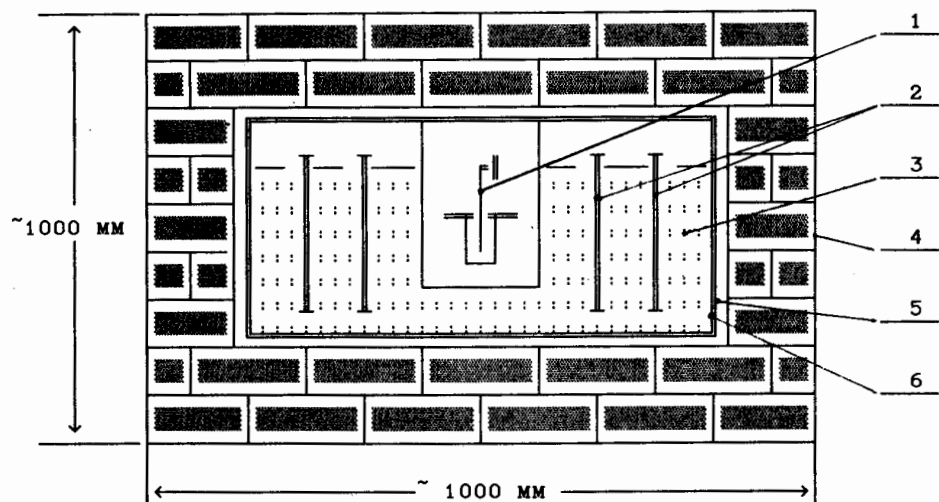


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

стенки $d = 2$ мм); фланец 2; исследуемый образец 3 из Ti или Zr (ϕ 6 мм, $l = 240$ мм). Длина образца, находящегося внутри цилиндра 1,

составляла 120 мм. На противоположном конце образца 3 устанавливался акустический датчик 4. Уплотнение между фланцем 2 и образцом 3 осуществлялось с помощью прокладок 5 из вакуумной резины. Фланец мишени имел водяное охлаждение. Для уплотнения между цилиндром 1 и фланцем 2 использовалась медная прокладка 6.

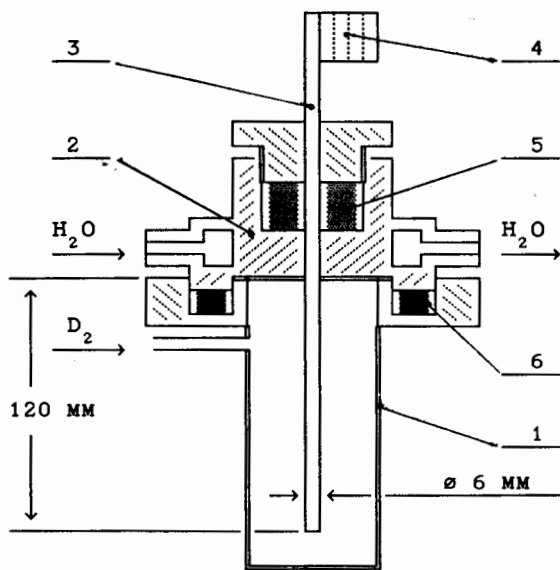


Рис. 2. Схема газовой мишени.

Регистрирующая электроника

Блок-схема регистрирующей электроники приведена на рис. 3. Электроника в таком варианте позволяла получать одновременно амплитудную и временную информацию о событиях, зарегистрированных как нейтронами, так и акустическим датчиками.

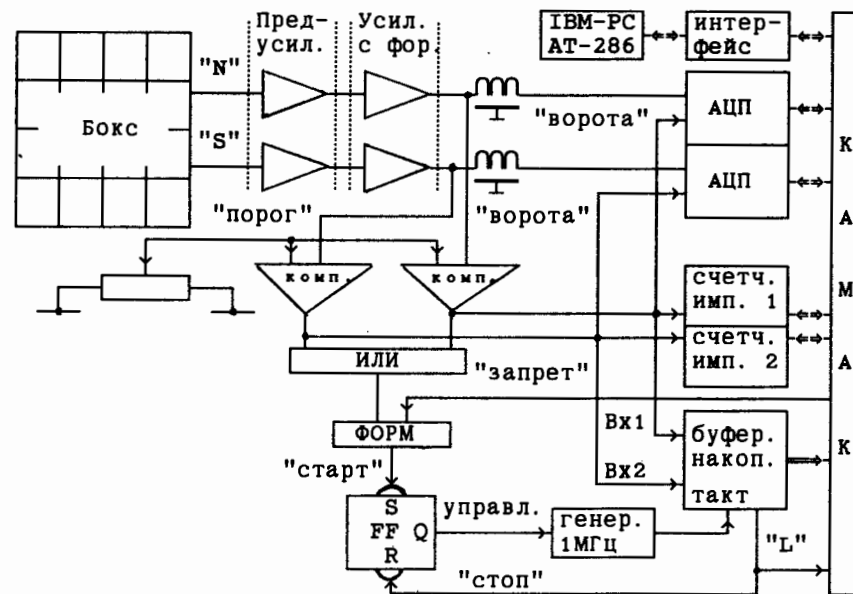


Рис. 3. Блок-схема регистрирующей электроники.

Канал регистрации нейтронов ("N") включал в себя зарядочувствительный предусилитель, спектрометрический усилитель с квазигауссовской формировкой сигналов (постоянная времени формирования $\tau = 2$ мкс) и аналогоцифровой преобразователь (АЦП) с временем преобразования менее 10 мкс. Эквивалентный шумовой заряд предусилителя при суммарной емкости нейтронных детекторов ~ 500 пф соответствовал энерговыделению в нейтронном детекторе около 100 кэВ (энерговыделение в детекторе в случае регистрации тепловых нейтронов по каналу реакции $n + {}^{10}\text{B} \rightarrow \alpha + {}^7\text{Li}$ составляет $\sim 2,3$ МэВ).

Регистрация сигналов акустической эмиссии (АЭ) производилась с помощью специального акустико-эмиссионного прибора АРГУС-7^{28/}.

В качестве приемника сигналов АЭ использовался широкополосный пьезодатчик на основе пьезокерамики ЦТС-19^{/29/}. Рабочая полоса частот измерительного тракта составляла $0,02 + 2$ МГц. Все использованные датчики АЭ были прокальброваны с помощью стенда, описанного в работе^{/30/}. В результате были определены их абсолютные амплитудно-частотные характеристики. Исходя из величины абсолютной чувствительности используемого пьезодатчика и учитывая то, что эффективное значение напряжения собственных шумов предусилителя, приведенное ко входу, не превышало уровня 5 мкВ, была проведена расчетная оценка "порогового" размера регистрируемых дефектов. Было установлено, что акустический канал обеспечивает надежную регистрацию ультразвуковых сигналов, генерируемых в процессе образования и развития дефектов с характерным размером 0,1 мкм и более, даже при условии учета их затухания в материале образца^{/29,31/}. Сигналы АЭ, преобразованные датчиком в электрические импульсы, имеющие в общем случае вид "затухающей" синусоиды и усиленные в приборе АРГУС-7, трансформировались пиковым детектором в ступенчатую огибающую, которая с помощью дополнительного усилителя преобразовывалась в моноимпульс квазигауссовской формы длительностью около 12 мкс. Таким образом, каждому событию АЭ соответствовал один импульс, параметры которого (амплитуда и время появления) регистрировались.

Для формирования логических сигналов в нейтронном ("N") и акустическом ("S") каналах использовались интегральные дискриминаторы и формирователи длительности (длительность логических сигналов "ворота" составляла ~1 мкс). Сигналы с выхода формирователей одновременно подавались на счетчики импульсов и на входы буферных накопителей, стробируемых генератором тактовой частоты (1 МГц), запуск которого осуществлялся с помощью схемы логического суммирования сигналов (ИЛИ), формирователя (ФОРМ) и триггера (FF) любым первым импульсом, пришедшим с нейтронных счетчиков, либо с акустического датчика. Число каналов буферного накопителя составляло 1024, что, в свою очередь, позволяло измерять (при заданной частоте тактового генератора) временные интервалы между последовательно зарегистрированными событиями как в нейтронном, так и в акустическом каналах в течение ~1 мс. По окончании 1 мс содержимое всех амплитудно-цифровых преобразователей и буферных накопителей передавалось в ПЭВМ АТ-286.

Условия проведения опытов

Нами проведены опыты по исследованию явления НТС в газовой фазе с образцами из Ti и Zr. Перед началом измерений исследуемый образец помещался в газовую мишень и проводилась вакуум-термическая тренировка его по следующей технологии. Вначале осуществлялся нагрев образца из Ti (Zr) до температуры ~650 К при постоянно включенной вакуумной откачке объема мишени. При достижении давления остаточных газов в объеме мишени $\sim 10^{-3}$ мм рт.ст. температура повышалась до 1050 К. При данной температуре вакуумная откачка продолжалась до тех пор, пока вакуум в мишени не достигал $\sim 10^{-3}$ мм рт.ст. (причем степень газовой выделенности в объеме мишени при отключенной откачке не превышала 10^{-2} мм рт.ст./ч). По достижении этих параметров прогрев мишени прекращался и производился напуск в мишень предварительно очищенного дейтерия под давлением 15 ат (очистка дейтерия осуществлялась с помощью цеолитовых адсорберов, помещенных в жидкий азот; содержание примесей в очищенном дейтерии не превышало $5 \cdot 10^{-7}$ об. д.). Насыщение образцов дейтерием при температуре 1050 К производилось в течение 15 мин, затем мишень охлаждалась до комнатной температуры и отсоединялась от системы газообеспечения (давление дейтерия в мишени составляло несколько атмосфер). Количество дейтерия, поглощенного образцами из Ti и Zr, составляло 4,2 л.ат и 1,7 л.ат соответственно. Результаты проведенных измерений распределения концентраций дейтерия по длине образцов свидетельствовали о том, что дейтерий в указанных количествах практически полностью поглощался в нижней части образцов (из-за наличия градиента температуры по длине образца в процессе его вакуум-термической тренировки и насыщения дейтерием) с образованием дейтеридов TiD_2 и ZrD_2 . Длина активной части образца из титана составляла 6,6 см, а из циркония - 3,7 см.

Эксперименты были проведены с двумя идентичными образцами из Ti и одним образцом из Zr. Полное время набора статистики составляло ~180 ч. В течение эксперимента периодически чередовались рабочие экспозиции (мишень с насыщенным дейтерием образцом находилась в боксе) с фоновыми экспозициями (мишень извлекалась из бокса). В среднем продолжительность каждой экспозиции составляла ~1 ч. Рабочие экспозиции проводились при различных условиях:

- а) температура мишени $T = 300$ К;
- б) температура мишени $T = 80$ К;
- в) резкое охлаждение мишени от $T = 300$ К до $T = 80$ К;
- г) естественное утепление мишени от 80 К до 300 К;
- д) нагрев мишени до 400 К с последующим резким охлаждением ее до температуры жидкого азота (≈ 80 К);

е) повторение процедур а) + д) после обезгаживания образцов при температуре 1050 К и повторного насыщения их дейтерием.

На протяжении всего эксперимента периодически проводилась калибровка спектрометрических каналов нейтронных детекторов и акустического датчика с помощью стандартного источника нейтронов ^{252}Cf и генератора акустических колебаний (составная часть прибора АРГУС-7) соответственно.

На рис. 4 в качестве примера приведено амплитудное распределение сигналов с нейтронных детекторов, полученное при калибровке спектрометрического канала источником ^{252}Cf ,

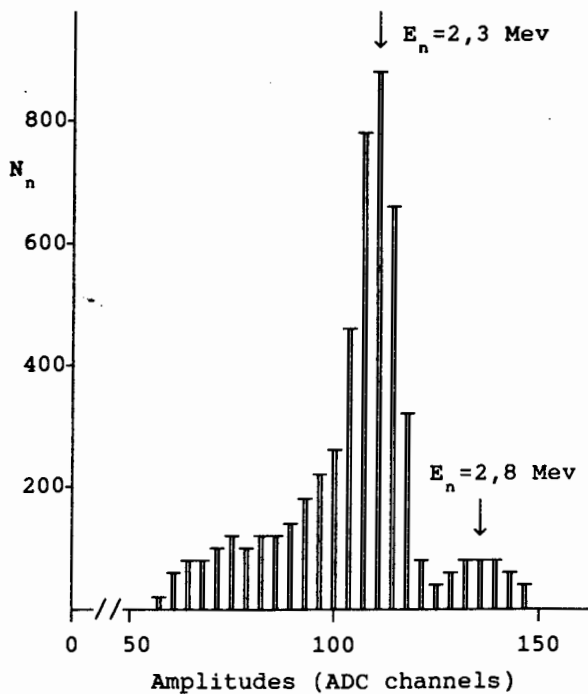


Рис. 4. Амплитудное распределение сигналов с нейтронных детекторов при калибровке источником ^{252}Cf .

Нейтронный фон, усредненный по всем фоновым экспозициям, составлял $8 \cdot 10^{-2}$ имп/с. Флуктуации фона в течение отдельных экспозиций (относительно приведенной величины) описывались нормальным распределением со стандартным отклонением $\sigma \approx 5 \cdot 10^{-4}$ имп/с.

АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ

На основании анализа всей совокупности экспериментальных данных, полученных с образцами из Ti и Zr, нами сделаны следующие выводы.

1. Для различных температур образцов (80 К, 300 К, естественное утепление 80 К \rightarrow 300 К, криоудары 300 К \rightarrow 80 К и 400 К \rightarrow 80 К) ни для одной экспозиции с насыщенными дейтерием титановыми и циркониевыми образцами не наблюдалось в пределах статистических ошибок превышения выхода нейтронов над уровнем нейтронного фона.

2. Сравнение нейтронных амплитудных спектров, полученных в рабочих и фоновых экспозициях, подтверждает вывод 1. На рис. 5 приведено характерное амплитудное распределение, полученное в результате суммирования данных нескольких фоновых экспозиций.

3. Обработка нейтронных распределений с введением определенных амплитудных критериев также свидетельствует об отсутствии различия между рабочими и фоновыми экспозициями. На рис. 4 стрелками указан диапазон амплитуд сигналов с нейтронных детекторов, отбираемых для анализа. Положение центра тяжести основного пика в распределении соответствует энерговыделению в детекторе $\sim 2,3$ МэВ (согласно каналу реакции захвата теплового нейтрона $n + {}^{10}\text{B} \rightarrow \alpha + {}^7\text{Li}^* + 2,3$ МэВ), а второго пика, который по площади от первого пика составляет $\sim 7\%$, соответствует регистрации канала реакции $n + {}^{10}\text{B} \rightarrow \alpha + {}^7\text{Li} + 2,8$ МэВ.

4. Наблюдается акустическая эмиссия, возникающая при появлении трещин в образцах из Ti и Zr, насыщенных дейтерием. На рис. 6 приведено временное распределение акустических сигналов в течение 1 мс, возникающих при образовании трещин в образцах из дейтерида титана. Данное распределение соответствует только одной передаче информации (в экспозиции при утеплении образца из Ti от 80 К до 300 К) с буферного накопителя в ПЭВМ.

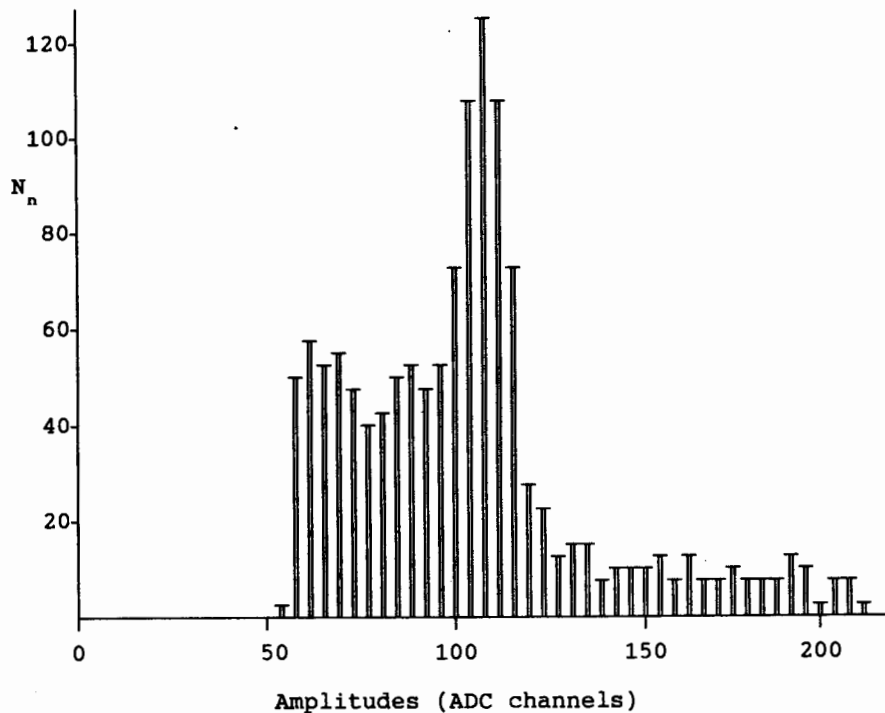


Рис.5. Амплитудное распределение сигналов с нейтронных детекторов, полученное в фоновых экспозициях в течение 6,5 ч.

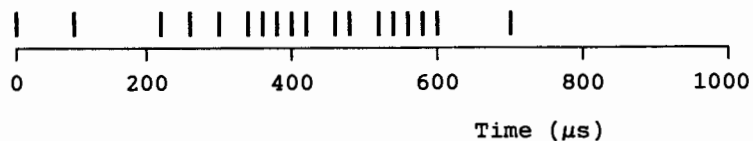


Рис.6. Временное распределение акустических сигналов, возникающих при образовании трещин в образцах из дейтерида титана, в течение 1 мс, соответствующее только одной передаче информации с буферного накопителя в ПЭВМ.

5. Интенсивность акустической эмиссии в неравновесных условиях - в процессе наводораживания образцов из Ti и Zr, а также при создании криоударов (резкое понижение температуры образца) существенно выше, чем в равновесных условиях (процесс сорбции закончен, температура образцов постоянна). На рис.7 приведено амплитудное распределение сигналов с датчика акустической эмиссии, полученное в экспозиции с образцом из Ti, помещенным в жидкий азот, спустя 15 мин после окончания процесса насыщения титана дейтерием (длительность экспозиции 1 ч). Аналогичное распределение, полученное в экспозиции с этим же образцом, но в процессе его утепления от 80 К до 300 К, приведено на рис.8 (время экспозиции ~2,2 ч).

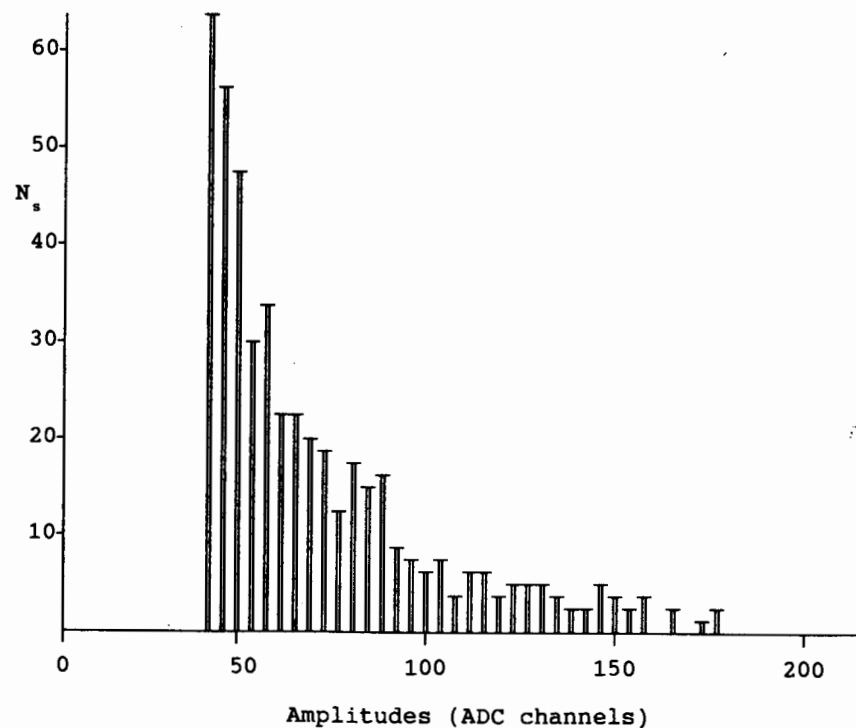


Рис.7. Амплитудное распределение сигналов с акустического датчика, полученное в экспозиции с образцом из Ti, насыщенным дейтерием и помещенным в жидкий азот через 15 мин после окончания процесса насыщения (время экспозиции 1 ч).

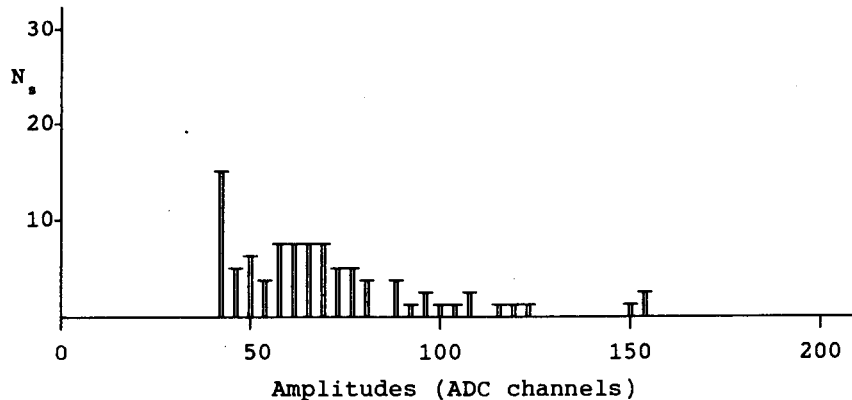


Рис.8. Амплитудный спектр акустических сигналов, полученный в экспозиции с дейтеридом титана в процессе его утепления от температуры 80 К до 300 К (время экспозиции 2,2 ч).

6. Наблюдается заметное уменьшение интенсивности акустической эмиссии от экспозиции к экспозиции с одним и тем же образцом (при одних и тех же условиях) по сравнению со "свежим" образцом, насыщенным дейтерием.

7. Ни в одной экспозиции, как с дейтеридом титана, так и с дейтеридом циркония, не обнаружена временная корреляция между моментами появления нейтронов и сигналов с акустического датчика.

Из всего набора экспериментальных данных (в предположении существования низкотемпературного ядерного синтеза) нами получены на 90% уровне достоверности верхние граничные оценки интенсивности гипотетического источника нейтронов на основе дейтерида титана и циркония

$$I_n^{Ti} \leq 10^{-3} \text{ с}^{-1} \cdot \text{г}^{-1},$$

$$I_n^{Zr} \leq 2 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1} \cdot \text{г}^{-1}.$$

Соответствующие граничные оценки возможной скорости реакции (1а) в Ti и Zr в расчете на одну пару дейтронов равны

$$\lambda_{dd}^{Ti} \leq 10^{-25} \text{ с}^{-1} \cdot (\text{dd})^{-1},$$

$$\lambda_{dd}^{Zr} \leq 3 \cdot 10^{-25} \text{ с}^{-1} \cdot (\text{dd})^{-1}.$$

Полученное значение λ_{dd}^{Ti} находится в хорошем согласии с результатами наших ранних работ /17,18,32/, выполненных с использованием методики, отличной от настоящей. Тем не менее, согласно литературным данным, имеется большое количество работ по исследованию НТС в дейтериде титана, в которых получен как положительный, в плане существования НТС, так и отрицательный результат. Что касается найденного граничного значения λ_{dd}^{Zr} в дейтериде циркония, то сравнение с результатами других работ свидетельствует о ситуации, аналогичной ситуации с Ti.

В заключение следует отметить, что созданная нами экспериментальная установка позволяет, в принципе, проводить корреляционные опыты по исследованию НТС с различными дейтеридами металлов как в газовом, так и в электролизном режимах.

Авторы выражают признательность В.Б.Беляеву и З.В.Крумштейну за плодотворные дискуссии, Г.В.Карпенко и Ш.Г.Шамсутдинову за помощь при создании установки.

Литература

1. Fleischmann M., Pons S. //J.Electroanal. Chem. - 1989.- v.261. - p.301; Erratum - 1989.- v.263. - p.187.
2. Jones S., Palmer E.P., Czirr J.B. et al. //Nature, London - 1989.- v.338. - p.737.
3. Царев В.А. //УФН. - 1990.- т.160. - с.1.
4. Bertin A. et al. //Nuovo Cim. - 1989.- v.101A. - p.997.
5. Iyengar P.K. Paper submitted to 5-th Intern. Conference on Emerging Nuclear Energy Systems (ICENES V). - Karlsruhe, FRG, July 3-6, 1989.
6. Mizuno T., Akimoto T., Sato N. //Ibidem. p.1333.
7. De Ninno A., Frattolillo et al. //Nuovo Cim. - 1989.- v.101. - p.841.
8. Menlove H.O., Fowler M.M et al. - Los Alamos, 1989. - (LA-UR-89-1570).
9. Secliger D. et al. //Electrochim. Acta - 1989.- v.34. - p.991.
10. Paller D. et al. //Ibidem. KL.A. 1989. Bd.333. p.319.
11. Celani F. et al. Frascati preprint LNF-89/048 - September 1989 (Submitted to Nuovo Cim.).
12. Боровой И.А. и др. - Харьков, 1989. - (ТМК-89-5).

13. Abriola D. et al. //J.Electroanal. Chem. - 1989.- v.265. - p.355.
14. Zak J. et al. Papers submitted to 40-th Meeting of Intern. Society of Electrochemistry - Kyoto, Japan, September 1989. - v.11. - p.1335.
15. Bockris J.O'M. et al. //Ibidem p.1332.
16. Зеленский В.Ф. и др. - Харьков, 1989. - (ХФТИ 89-61).
17. Brudanin V.B., Bystritsky V.M., Egorov V.G. et al. //Phys. Lett.A - 1990.- v.146, N.6. - p.347-350.
18. Brudanin V.B., Bystritsky V.M., Egorov V.G. et al. //Phys. Lett.A - 1990.- v.146, N.6. - p.351-356.
19. Gai M. et al. //Nature, London - 1989.- v.340 - p.29.
20. Lewis N.S. et al. //Ibidem p.525.
21. Kira A. et al. Paper submitted to 40-th Meeting of Intern. Society of Electrochemistry - Kioto, Japan, September 1989. - v.11.- p.1339.
22. Aleksan R. et al. Preprint DPhPE 89-19, LPC-89-17.CEN; Saclay, France, October 1989.
23. Голубничий П.И. и др. - Москва, 1990. - (Препринт ФИАН СССР, N 109).
24. Голубничий П.И. и др. - Москва, 1990. - (Препринт ФИАН СССР, N 172).
25. Артюхов В.И., Борисова А.А., Быстрицкий В.М. и др. - Дубна, 1988. - (P 13-88-776). ОИЯИ.
26. Голубничий П.И. и др. - Москва, 1989. - (Препринт ФИАН СССР, N 113); ДАН СССР - 1989. - т.307. - с.99.
27. Голубничий П.И. и др. - Москва, 1989. - (Препринт ФИАН СССР, N 149).
28. Прибор акустико-эмиссионный АФ-15 (ГСП АРГУС-7) ШЮ2.739.018.
29. Артюхов В.И., Вакар К.Б., Макаров В.И. и др. / Акустическая эмиссия и ее применение для неразрушающего контроля в ядерной энергетике. - М.: Атомиздат, 1980, с.216.
30. А.С.1457587 "Устройство калибровки преобразователей сигналов акустической эмиссии" / Артюхов В.И., Павлов А.А., Тутнов А.А., Тутнов И.А.
31. Артюхов В.И. - Москва, 1981. - (Препринт ИАЭ-3454).
32. Brudanin V.B., Bystritsky V.M., Egorov V.G. et al. - Dubna, 1989. - (D 15-89-594). JINR.

Рукопись поступила в издательский отдел
30 апреля 1991 года.