91-289



СООБЩЕНИЯ Объединенного института ядерных исследований дубна

Д15-91-289

1991

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

НАБЛЮДЕНИЕ НЕЙТРОННЫХ ВСПЫШЕК ПРИ НАСЫЩЕНИИ ТИТАНА ДЕЙТЕРИЕМ В РЕЖИМЕ ЭЛЕКТРОЛИЗА D₂O

*Московский химико-технологический институт им.Д.И.Менделеева В работе^{/1/} нами приведены результаты корреляционного эксперимента по проверке существования низкотемпрературного ядерного синтеза (HTC)

в титане и цирконии при насыщении их дейтерием из газовой фазы. Основные выводы работы, в которой исследовался канал реакции (1а), сводились к следующему: не наблюдалось превышения выхода нейтронов над уровнем фона; не обнаружена временная корреляция между моментами появления нейтронов и сигналов с акустического датчика (проверка ускорительной модели /2,3/, предложенной для объяснения механизма HTC). Учитывая результаты многих pador^{/4-9}/, Свидетельствующих о спорадическом характере HTC, а также отсутствие воспроизводимости этих результатов (по всей ВИДИМОСТИ это связано с изначальным различием в технологии приготовления исследуемых образцов), мы решили продолжить экспериментальную проверку гипотезы существования низкотемпературного ядерного синтеза с некоторыми модификациями как регистрирующей аппаратуры (использованной в работе /1/), так И технологии приготовления образцов. Ниже приводится описание эксперимента по ПОИСКУ возможной эмиссии нейтронов из титанового электрода, насыщаемого дейтерием в режиме электролиза тяжелой воды D.O.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

На рис 1 приведена схема экспериментальной установки. Регистрация нейтронов, образующихся в реакции (1а), осуществлялась помощыю детекторов тепловых нейтронов 1 C (пропорциональные счетчики на основе BF_a), расположенных вокруг электролизера 2 (во внутреннем кольце - 16 счетчиков, в наружном - 20). Для замедления нейтронов до тепловых скоростей использовался гранулированный целыр защиты спектрометрического полиэтилен З. С нейтронного канала возможных электромагнитных наводок OT BCe нейтронные детекторы 1 помещались в бокс 4, стенки которого были изготовлены из листовой меди и железа. Электролизер 2 накодился в центре бокса B специальном колодце 5. выполненном в виде полого

BOACREMANNIEN BACTERYT (BACHELAX BLCJEBOBAUES 545 MOTEKA



Рис.1. Схема экспериментальной установки.

цилиндра, стенки которого были также изготовлены из меди и железа. Толщина слоя гранулированного полизтилена, находящегося между стенкой колодца 5 и нейтронными детекторами, расположенными во внутреннем кольце, составляла ≈ 70 мм. Созданная таким образом исключить система экранов поэволила практически полностью возможные электромагнитные наводки как на нейтронный, так и на акустический спектрометрические каналы. Для подавления внешнего нейтронного фона бокс был окружен борированным полизтиленом 6 толщиной ~200 мм. Использование такой защиты позволило примерно на два порядка уменьшить уровень фоновой загрузки нейтронных детекторов.

На рис.2 приведен схематический чертеж электролизера. Датчик сигналов акустической эмиссии 1 был установлен в верхней части катода 2, выполненного в виде цилиндра диаметром 12 мм и общей длиной 200 мм. С помощью резиновой прокладки 3 осуществлялось уплотнение между катодом 2 и фланцем электролизера 4, одновременно прокладка 3 являлась акустической развязкой между катодом и другими элементами элкетролизера. Фланец 4 был изготовлен из органического стекла. При помощи фторопластовых прокладок 5 осуществлялось уплотнение между фланцем 4, анодом 6 и корпусом электролизера 7, выполненного из нержавеющей стали. Для охлаждения



Рис.2. Схематический чертеж электролизера.

электролизера использовалась вода, пропускаемая через зазор между анодом 6 и корпусом 7. Анод 6 был изготовлен из платины в виде полого стакана диаметром 100 мм с толщиной стенки 0,4 мм.

Нами были проведены измерения с двумя катодами: а) с катодом изготовленным из химически чистого титана; б) с катодом из этого же материала, но снаружи покрытым слоем никеля толщиной 0,4 мкм. Идея покрытия поверхности титанового катода тонким слоем никеля возникла из следующих рассуждений. Во-первых, такое покрытие предотвращает образование окисной пленки титана (окисные пленки различных веществ, в принципе, являются своеобразным барьером для

проникновения изотопов водорода в эти вещества и в области высоких давлений и температур довольно часто используются в качестве "защитных" покрытий /10,11/ для предохранения металлов и сплавов от водородной коррозии) что, в свою очередь, приводит к возрастанию скорости проникновения дейтерия в титан, а, следовательно. И скорости процесса насыщения его дейтерием. Во-вторых, при столь быстром насыщении поверхностного слоя титана дейтерием в нем могут возникать достаточно большие градиенты концентрации дейтерия, что, согласно /12/, является необходимым условием для эффективного протекания реакций HTC. Объем тяжелой воды, заливаемой электролизер, был равен ≈ 400 см³. В качестве электролита использовалась щелочь LiOD, концентрация которой равнялась 0,1 М. Активная часть катода, находящаяся в D_O, составляла по длине мм (масса титана ≅ 26 г). Ток электролиза при напряжении между электродами 30 В был равен ~2,8 А.

ЭЛЕКТРОНИКА

На рис. 3 приведена блок-схема регистрирующей электроники. Структура электроники позволяла получать одновременно амплитудную и временную информацию о событиях зарегистрированных как нейтронными детекторами (N), так и акустическим датчиком (S), катоде электролизера. Нейтронный на установленным зарядочувствительного канал состоял из спектрометрический предусилителя (PREAMPL), спектрометрического усилителя (SHAPING AMPL) с квазигауссовской формировкой сигналов (постоянная времени формирования т ≈ 2 мкс) и двух аналого-цифровых преобразователей (ADC) с временем преобразования менее 10 мкс, предназначенных для измерения амплитуд двух последовательно следующих сигналов с нейтронных детекторов в течение определенного выбранного интервала времени (в данной постановке эксперимента длительность этого интервала составляла 1 мс). Эквивалентный шумовой заряд предусилителя при суммарной емкости нейтронных детекторов 500 пф соответствовал энерговыделению в нейтронных детекторах равному ≈100 кэВ (энерговыделение в детекторе в случае регистрации тепловых нейтронов по каналу реакции n + ${}^{10}B \rightarrow \alpha$ + ${}^{7}Li$ соответствует 2,3 МэВ). Наличие амплитудной информации о втором зарегистрированном событии нейтронными детекторами существенно повысило степень отбора "полеэных" событий в режиме "off-line".



Рис. 3. Блок-схема регистрирующей электроники.

Регистрация сигналов акустической эмиссии (АЭ), возникарщей при образовании трещин в титановом катоде в процессе сорбции дейтерия (образование дейтерида титана), осуществлялась с помощью специального акустико-эмиссионного прибора АРГУС-7^{/13/}. В качестве

- 5

приемника сигналов АЭ использовался широкополосный пьезодатчик на основе пьезокерамики ЦТС-19. Рабочая полоса частот измерительного тракта составляла 0,02 + 2 МГц. Все использованные датчики АЭ были прокалиброваны с помощыю стенда, описанного в работе /14/. В результате были определены их чабсолютные 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 уровень 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. Сигналы АЭ, преобразованные датчиком в электрические импульсы, имеющие в общем случае вид "затухарщей" синусоиды, и усиленные в приборе АРГУС-7, трансформировались пиковым детектором в ступенчатую огибающую, которая с помощью дополнительного усилителя (идентичного установленному в нейтронном канале) преобразовывалась в моноимпульс квазигауссовской формы длительностью около 12 мкс. Таким образом, каждому событию АЭ соответствовал один импульс, параметры которого (амплитуда и время появления) регистрировались.

Амплитудные пороги регистрации сигналов в нейтронном (N) и акустическом (S) каналах задавались с помощью компараторов (COMP). Для формирования логических сигналов "GATE" внешнего управления ADC использовались формирователи длительности (длительность сигналов составляла "10 мкс). Логические сигналы длительностью "1. мкс поступали на входы буферного накопителя (SHIFT REGISTER 16×1024), стробируемого генератором тактовой частоты (GEN. 1 МН2), управление которого осуществлялось любым первым импульсом, пришедшим либо с нейтронных детекторов, либо с акустического датчика. Число каналов буферного накопителя составляло 1024, что позволяло измерять при заданной частоте тактового генератора временные интервалы между последовательно зарегистрированными событиями как в нейтронном, так и в акустическом каналах в течении 1 мс. Следует отметить, что длительность интервала измерения в зависимости от условий проведения эксперимента MOXET легко варьироваться путем изменения тактовой частоты генератора. По окончании 1 мс содержимое всех амплитудно-цифровых

преобразователей и буферного накопителя передавалось в ПЭВМ АТ-286. В течение времени передачи не производилась регистрация сигналов как по нейтронному, так и по акустическому каналам. Блокировка осуществлялась с помощью сигнала "INHIBIT", формируемого по команде от ПЭВМ и подаваемого на инверсный вход логического формирователя (LOGIC SHAPER). Содержимое счетчиков (COUNTER) соответствовало полному числу зарегистрированных импульсов по каждому из каналов в течение времени экспозиции.

УСЛОВИЯ ПРОВЕДЕНИЯ ОПЫТОВ

Нами были проведены две серии опытов в режиме электролиза тяжелой воды D₀0 с катодами из Ti. В первой серии опытов использовался катод из чистого титана (опыт I), а во второй серии - титановый катод с никелевым покрытием (опыт II). Поверхностная плотность тока злектролиза в опыте I была равна 170 мА/см², а в опыте II - 120 мА/см. Полное время набора статистики в опытах I и II было примерно одинаковым и составляло 80 часов. Рабочие экспозиции чередовались с фоновыми, в течение которых электролизер находился в отключенном состоянии. В среднем длительность рабочих и фоновых экспозиций составляла 2 часа. Кроме этого, по окончании опытов I и II были проведены другого типа фоновые опыты с включенным электролизером, в который вместо тяжелой воды D_O была залита обычная вода H₂O, а также вместо использованного в эксперименте катода из титана был помещен катод из "свежего" титана. Плотность тока электролиза в рабочих и фоновых экспозициях была примерно одной и той же. На протяжение всех экспериментов для проверки стабильности работы регистрирующей электроники и детекторов проводилась калибровка нейтронного и акустического каналов с помощью стандартных источников нейтронов Pu-Be, 252 Cf и генератора сигналов акустической эмиссии, являющегося составной частью прибора АРГУС-7.

На рис.4 приведены амплитудные распределения первых (1) и вторых (2) зарегистрировнных нейтронов, полученные при калибровке нейтронного канала с помощью источника ²⁵²Cf. Как видно, полученные амплитудные распределения идентичны, смещение же пиков в амплитудных распределениях относительно друг друга обусловлено разной ценой канала двух амплитудно-цифровых преобразователей (ADC). Из сравнения амплитудных распределений, полученных в

6



Amplitudes (ADC channels)

Рис.4. Амплитудные распределения 1-х и 2-х нейтронов, зарегитрированных нейтронными детекторами в случае их калибровки источником²⁵²Cf.

течение экспериментов, можно сделать утверждение, все что спектрометрические каналы работали стабильно, т. к. ни форма амплитудных распределений, ни положение центра тяжести пиков практически не изменялись. На рис.5, в качестве примера, приведено амплитудное распределение событий, полученное результате в суммирования данных нескольких рабочих экспозиций. Эффективность грегистрации нейтронов реакции (1а) экспериментальной установкой ²⁵²Cf, Помещенного в определялась с помощью источника место

100000



Рис.5. Амплитудное распределение событий (зарегистрированных нейтронным детектором), полученное в результате суммирования данных нескольких рабочих экспозиций.

установки электролизера, и оказалась равной (26 ± 1)%. Уровень нейтронного фона, усредненный по всем фоновым экспозициям, составлял ${}^{8}x10^{-2}$ имп/с, а флуктуации его в течение всего времени измерений описывались нормальным распределением со стандартным отклонением $\approx 3x10^{-3}$ имп/с относительно приведенной величины.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В настоящей работе мы предлагаем отличный от работы^{/4/} метод обработки экспериментальных данных. Суть его заключается в следующем. Используя то обстоятельство, что созданная электронная логика эксперимента позволяла получать временную и амплитудную информацию о последовательно зарегистрированных событиях в течение 1 мс на протяжение всего эксперимента, мы имели возможность в

- 9

режиме "off-line" производить построение распределений временных интервалов между моментами регистрации последовательных событий, удовлетворяющих заданным амплитудным критериям. Такая методика обработки данных позволила существенно понизить уровень фона, а следовательно повысить уровень достоверности идентификации эффекта в случае, конечно, его существования. Таким образом, для дальнейшего анализа отбирались только такие передачи информации в ПЭВМ, когда в течение 1 мс наблюдались два и более событий; зарегистрированных нейтронными детекторами.

На наш взгляд применение данной методики и анализа экспериментальных данных позволяет получить ответы на ряд вопросов:

1) существует ли, в принципе, низкотемпературный ядерный синтез?

2) процесс НТС во времени непрерывный или носит импульсный характер?

3) существует ли корреляция между моментами испускания нейтронов и моментами образования трещин в образцах из титана и других металлов в процессе сорбции дейтерия?

Остановимся более подробно на последовательности обработки экспериментальных данных

а) фоновые экспозиции

1) Для каждой фоновой экспозиции отбирались такие передачи информации в ПЭВМ, когда в течение 1 мс имеется два или более событий, зарегистрированных нейтронными детекторами ("полезные" передачи).

2) Исходя из полученной информации для каждой экспозиции производится построение распределений временных интервалов между зарегистрированными событиями в течение одной миллисекунды. Для подтверждения того, что фон изотропен в течение всего времени прповедения эксперимента, необходимо провести сравнение данных распределений (нормированных на одно и тоже время) как по полному числу событий, так и по форме.

3) Производится построение результирующего (просуммированного по всем фоновым экспозициям) распределения временных интервалов.

б) рабочие экспозиции

1) Каждая экспозиция разбивается на интервалы длительностью 0,5 ч таким образом, чтобы количество "полезных" передач ипформации в ПЭВМ в течение данного интервала было не менее двух. 2) Производится построение результирующего (просуммированного по всем выбранным интервалам) распределения временных интервалов между последовательными событиями, зарегистрированными нейтронными детекторами.

Окончательным этапом обработки всей совокупности экспериментальных данных являлось совместное фитирование результирующих временных распределений, полученных в рабочих экспозициях и в фоновых экспозициях за время $T = N_{tot} t_{int}$ (N число интервалов длительностью t_{int} = 0,5 ч, выбранных согласно критериям пункта "1)", за полное время рабочих экспозиций) аналитическим выражением вида:

 $\frac{dn}{dt} = A_{i}\varepsilon_{n}\exp\{-I_{n}\varepsilon_{n}t\} + [A_{i}\varepsilon_{c}\exp\{-I_{c}\overline{\varepsilon}_{c}t\} + B]T/T_{i}$ (2)

где, А, А, - нормировочные константы;

є - эффективность регистрации нейтронов реакции (1а)
экспериментальной установкой;

I_n – интенсивность испускания нейтронов во вспышке с учетом процесса замедления нейтронов в гранулированном полиэтилене и последующего их захвата ядрами ¹⁰В в нейтронных детекторах;

 $\overline{\varepsilon}_{c}$ - среднее значение эффективности регистрации нейтронов космического излучения экспериментальной установкой;

I – интенсивность потока нейтронов, обусловленного существованием атмосферных ливней;

В - уровень фона случайных совпадений;

Т. - полное время набора статистики в фоновых экспозициях.

Данная формула получена в предположении, что нейтронные вспышки имеют прямоугольную форму (при условии, конечно, существования таковых) и их длительность гораздо больше среднего времени от момента попадания нейтрона в полиэтилен, окружающий детекторы, до момента его захвата ядром ¹⁰ В. Согласно проведенным расчетам, для геометрии данной установки, это время составляет \overline{t} = 20 мкс. Выражение (2) применимо для аппроксимации распределения временных интервалов между последовательно зарегистрированными событиями, длительность которых больше величины \overline{t} .

С целью проверки ускорительной модели^{/2,3}, предложенной для объяснения явления НТС, нами был проведен анализ данных на предмет поиска временных корреляций между моментами появления сигналов с нейтронных детекторов и акустического датчика. Причем, чтобы исключить возможность случайных совпадений такого рода, нами при анализе данных (по сравнению с работой^{/1/}) применялись более жесткие критерии отбора: анализировались только "полезные" передачи информации в ПЭВМ.

Согласно проведенной обработки данных опытов I и II можно сделать следующие выводы.

1. Сравнение амплитудных распределений 1-х и 2-х зарегистрированных нейтронов, полученных в рабочих и фоновых экспозициях опыта I (катод из чистого титана) свидетельствует об отсутствии превышения выхода нейтронов в режиме электролиза D₂O над уровнем нейтронного фона.

2. Анализ распределений временных интервалов (между последовательно зарегистрированными событиями), полученных в рабочих и фоновых экспозициях опыта I, подтверждает вывод 1.

3. В опыте I не обнаружена корреляция между моментами регистрации нейтронов и моментами появления акустических сигналов.

4. В опыте II (катод из Ті покрыт слоем никеля) в процессе насыщения титана дейтерием в режиме электролиза обнаружена эмиссия нейтронов, имеющая характер отдельных вспышек стохастически распределенных во времени.

5. В результате аппроксимации экспериментальных данных выражением (2) получено значение интенсивности испускания нейтронов во вспышке, которое оказалось равным:

$I_{r} = (3,6 \pm 0,9) \times 10^{4} c^{-1}$

Получена также оценка длительности нейтронной вспышки:

$\tau \approx 300$ MKC.

51.11.0

NAR PLANE

Stranger of the second

На рис.6 приведено распределение временных интервалов между последовательно зарегистрированными нейтронами за вычетом фона (сплошная кривая – результат фитирования).

Следует отметить, что найденные нами характеристики нейтронных вспышек являются усредненными по всему времени проведения эксперимента (в связи с ограниченным набором статистики). Поэтому, для изучения реальной формы и возможной временной микроструктуры нейтронных вспышек НТС необходимо



Рис.6. Результирующее распределение временных интервалов между последовательно зарегистрированными нейтронами за вычетом фона (N – число событий, приходящихся на интервал 40 мкс; сплошная линия – результат фитирования).

проведение более длительных экспериментов, с цельр набора статистики, требуемой для однозначной интерпретации экспериментальных данных.

6. В опыте 11 не обнаружена корреляция между моментами испускания нейтронов и моментами появления сигналов с акустического датчика.

7. Интервалы между вспышками составляют от нескольких секунд до десятков минут.

8. Частота нейтронных вспышек с течением времени электролиза уменьшалась. Максимальная частота нейтронных вспышек наблюдалась в течение первых нескольких часов (≈ 4+5 ч), начиная с начала электролиза.

Полученные нами результаты свидетельствуют о том, что наблюдение импульсной эмиссии нейтронов реакции (1a) НТС путем сравнения выходов нейтронов в рабочих и фоновых экспозициях при использовании небольшого количества вещества, насыщаемого

12

дейтерием, и методики регистрации тепловых нейтронов с эффективностью существенно меньшей единицы становиться практически невозможным без применения предложенной нами системы регистрирующей электроники и методики анализа полученных экспериментальных данных.

Наблюдение нейтронных вспышек в настоящей работе после серии выполненных нами ранее работ^(1,15,16,17) с так называемыми отрицательными результатами является своеобразным стимулом для дальнейшего более детального исследования явления HTC.

На наш взгляд, использование методики регистрации быстрых нейтронов реакций НТС с помощью жидких сцинтилляторов с $n-\gamma$ разделением совместно с методикой измерения временных интервалов между последовательно зарегистрированными нейтронами несомненно позволит с достаточно высокой точностью получить информацию как о временной структуре, так и об интенсивности нейтронных вспышек (желательно такого рода эксперименты проводить в подземных лабораториях с низким уровнем нейтронного фона).

В заключение авторы выражают благодарность директору Лаборатории ядерных проблем Ц.Д.Вылову за постоянный интерес и поддержку данных исследований, В.Б.Беляеву за полезные дискуссии, Я.Раку за помощь при обработке результатов, Г.В.Карпенко и Ш.Г. Шамсутдинову за изготовление некоторых узлов экспериментальной установки.

Литература

1. Артюхов В.И., Быстрицкий В.М., Гилев А.И. и др. – Дубна, 1991. – (Сообщение ОИЯИ, D13-91-200).

2. Голубничий П.И., Куракин В.А., Филоненко А.Д. и др. - Москва, 1989.- (Препринт ФИАН СССР, N.113); ДАН СССР -1989.- т.307.- с.99. 3. Голубничий П.И., Царев В.А., Чечин В.А. и др. - Москва, 1989.- (Препринт ФИАН СССР, N.149).

4. De Ninno A., Frattolillo A., Lollobatista G. et al.// Nuovo Cim. - 1989. - v.101A. - p.841.

5. Menlove H.O., Fowler M.M., Garcia E. et al. - Los Alamos, 1989 - (LA-UR-89-1974);

Menlove H.O., Garcia E., Jones S.E. - NSF-EPRI Workshop, Washington, DC, Okt.16-18, 1989, NSF Workshop Proceedings. 6. Celani F., De Felice M., Fabbri E.L. et al. - Frascati, September 1989. - (Frascati preprint, LNF-89/048)

7. Celani F., Spallone A., Pace S. et al. // Fusion Technology -1990. - v.17, N.4. - p.718-724.

8. Menlove H.O., Miller M.C.// Nuc. Instr. & Meth. - 1990.v.A299. - p.10-16.

9. Iyengar P.K. Paper Submitted to 5-th Intern. Conference on Emerging Nuclear Energy Systems (ICENES \underline{V}). - Karlsruhe, FRG, July 3-6, 1989.

10. Быстрицкий В.М., Вошедченко Б.М., Грановский В.Б. и др. // Атомная Энергия - 1990. - т.69. - с.101-102.

11. Быстрицкий В.М., Вошедченко Б.М., Грановский В.Б. и др. -Дубна, 1991. - (Сообщение ОИЯИ, Р13-91-128).

12. Царев В.А.// УФН - 1990. - т.160. - с.1-54.

13. Артрхов 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.

14. А.С.1457587 "Устройство калибровки преобразователей сигналов акустической эмиссии" / Артюхов В.И., Павлов А.А., Тутнов А.А., Тутнов А.А., Тутнов И.А.

15. Brudanin V.B., Bystritsky V.M., Egorov V.G. et al. // Phys. Lett.A - 1990. - v.146, N.6. - p.347-350.

16. Brudanin V.B., Bystritsky V.M., Egorov V.G. et al. // Phys. Lett.A - 1990. - v.146, N.6. - p.351-356.

17. Brudanin V.B., Bystritaky V.M., Egorov V.G. et al. // Phys. Lett.A - 1990. - v.151,N.9. - p.543-546.

> Рукопись поступила в издательский отдел 25 июня 1991 года.

14