

УДК 539.27

НЕОБЫЧНОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ ВОДОРОДОСОДЕРЖАЩИХ СТРУКТУР НА ЗАХВАТ НЕЙТРОНОВ ЯДРАМИ ЭТИХ СТРУКТУР

А. А. Бергман, А. Е. Самсонов

При исследовании радиационного захвата нейтронов на спектрометре по времени замедления нейтронов в свинце обнаружено аномально большое увеличение захвата нейтронов в мелкодисперсных соединениях кобальта и марганца, содержащих водород. Прослежена энергетическая зависимость этого увеличения соответственно до 50 и 150 эВ, резко отличающаяся от той, которая вызывается замедлением нейтронов на водороде. Нейтроны, прошедшие через образцы, захватывались ядрами золота в соответствии с ожидаемым замедлением на водороде образцов.

Исследования проводились на нейтронном спектрометре по времени замедления нейтронов в свинце [1 – 3] Института ядерных исследований РАН. Первые результаты исследований опубликованы в работе [4], где дана их ошибочная интерпретация.

Нейтроны из реакции $T(d, n)^4He$ генерировались импульсно внутри свинцового куба спектрометра. Измерялось в функции времени замедления нейтронов t отношение числа отсчетов пропорционального гамма-счетчика, вызванных захватом нейтронов в образцах (надеваемых на счетчик), к числу отсчетов борного счетчика. Счетчики помещались поочередно в измерительный канал внутри свинцового куба спектрометра. Кроме того, аналогичные измерения проводились в центре полости в графитовой призме, придвигаемой к свинцовому кубу. Мониторами в кубе и графитовой призме служили борные счетчики.

Экспериментальное относительное увеличение захвата нейтронов в образцах C_e , вызванное присутствием водорода, определялось по формуле

$$C_e = \frac{I_\gamma(t)M_B}{(1 + K(t))I_B(t)M_\gamma} : \frac{\Delta I_\gamma^T M_B^T}{\Delta I_B^T M_\gamma^T} - 1. \quad (1)$$

Здесь член до двоеточия соответствует зависимости от времени замедления нейтронов t интенсивности отсчетов гамма-счетчика от захвата нейтронов в образце $I_\gamma(t)$, отнесенной к аналогичной зависимости отсчетов борного счетчика $I_B(t)$; обе эти величины нормированы на отсчеты монитора M_γ и M_B ; $K(t)$ – поправка на отклонение сечения захвата нейтронов марганцем или кобальтом от закона $1/v$. (Для реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ при энергии $E_n < 150$ эВ $|K| < 0,008$ [1].) Член после двоеточия – аналогичное отношение для тепловых нейтронов, полученных в графитовой призме, где присутствие водорода не сказывается. Очевидно, что при отсутствии водорода в образце $C_e = 0$. Величины ΔI_γ^T и ΔI_B^T являются разностями отсчетов для двух интервалов t – от 1600 до 4600 и от 4600 до 7600 мкс, что исключает вклад активации.

Величины $K(t)$ нами были уточнены при измерении с образцами металлического марганца и обезвоженными окислами MnO_2 и Co_3O_4 ¹. В члены $I_\gamma(t)$, $I_B(t)$, ΔI_γ^T и ΔI_B^T введены поправки на поглощение нейтронов в образцах и борных счетчиках, а в члены $I_\gamma(t)$ и $I_B(t)$ – поправки на вклад рециклических нейтронов.

Радиатор гамма-счетчика (1 мм свинца и под ним 1,5 мм магния) обеспечивал эффективность регистрации гамма-квантов, пропорциональную их энергии и, следовательно, эффективность регистрации акта захвата нейтрона, пропорциональную энергии связи нейтрона. Поэтому вклад от захвата нейтронов водородом в отсчеты от образцов не превышал 0,27%. Конструкция счетчиков и чистота газов обеспечивали высокую стабильность регистрации гамма- и борных счетчиков [5]. Воспроизводимость отсчетов лучше 1 % обеспечивалась использованием двух уровней дискриминации импульсов.

Определение водорода в образце производилось относительным методом: гамма-счетчик окружался золотой фольгой, поверх которой надевался либо образец, либо фоновый контейнер с полиэтиленовыми пленками. В интервале E_n от 7 до 40 эВ (область, где нет нейтронных резонансов золота) наблюдалось существенное увеличение числа

¹Из данных $K(t)$ мы получили уточненные радиационные ширины нейтронных резонансов кобальта с энергией 132 эВ ($\Gamma_\gamma = 0,43 \pm 0,012$ эВ) и марганца с энергией 336 эВ ($\Gamma_\gamma = 0,46 \pm 0,015$ эВ). Эти значения хорошо согласуются с данными работы [6].

отсчетов от захвата тех нейтронов, которые после замедления на водороде приобрели энергию, близкую к резонансу золота при $E_n = 4,9$ эВ. Результаты определения водорода этим методом с хорошей точностью совпали с весовым методом определения водорода при насыщении обезвоженных образцов Co_3O_4 водой в атмосфере с влажностью 100%, а также содержанием водорода в образцах с сухим соединением $CoOOH$, которое является устойчивой формой гидроокиси [7, 8].

Результаты определения водорода в образцах по уменьшению счета от гамма-захвата ядрами золота в резонансе при $E_n = 4,9$ эВ, вызываемому водородом образца, совпали с результатами вышеизложенного метода, однако, точность определения была хуже.

Влияние водорода на захват нейтронов (за счет замедления) определялось также расчетным путем; при этом учитывалось изменение углового распределения рассеянных в образце нейтронов по отношению к поверхности².

Для проверки расчетов образцы из сухого порошка металлического марганца и окиси кобальта Co_2O_3 , содержащей влагу (без которой Co_2O_3 не существует³), окружались полиэтиленовыми пленками. Увеличение счета за счет замедления в пленках в интервале энергий нейтронов 1 – 13 эВ составило $(7,9 \pm 0,7)\%$ и $(7,0 \pm 0,4)\%$, в согласии с расчетными значениями 7,9 и 7,3%. При энергиях нейтронов меньших 1 эВ происходило быстрое уменьшение влияния водорода, находящегося как в образце, так и в полиэтиленовой пленке вследствие того, что водород находится в связанном состоянии.

В таблице 1 приведены данные о влиянии водорода для интервала энергий 1 – 13 эВ. Средние пути нейтронов в образце n (выраженные числом ядер Mn или Co на $см^2$) характеризуют толщины образцов. Здесь указаны экспериментальные C_e и расчетные C_c значения относительного увеличения захвата нейтронов ядрами, вызываемого замедлением нейтронов на водороде, а также их разности. Данные для первых трех образцов демонстрируют правильность введения поправок на активацию и поглощение нейтронов.

Для области 1 – 13 эВ величины C_e и C_c практически не зависят от энергий, причем экспериментальные значения для образцов N 4 – N 10 превышают расчетные в 1,5 – 4,3 раза. Наибольшее превышение захвата получено для воздушно-сухого окисла марганца MnO_2 (образец N 4): $C_e = (21 \pm 0,7)\%$, что в $2,96 \pm 0,16$ раза больше, чем по расчету.

²За помощь в расчетах благодарим М. В. Казарновского и С. М. Поташева.

³В исследованных образцах на одну молекулу H_2O приходилось 4,6 молекулы Co_2O_3 .

Наибольшее отношение C_e к C_c получено для воздушно-сухого окисла кобальта Co_2O_3 (N 5) – $4,27 \pm 0,31$.

Т а б л и ц а 1

Результаты измерений влияния водорода в образцах на захват нейтронов ядрами в интервале энергий 1 – 13 эВ

Образец и его номер	$\bar{n} \cdot 10^{-21}$	$C_c, \%$	$C_e, \%$	$(C_e - C_c), \%$
1. <i>Mn</i> металл	9,21	0	1,3 $\pm 0,9$	1,3 $\pm 0,9$
2. Co_3O_4 прокаленный	2,55	0,08 $\pm 0,08$	- 0,4 $\pm 0,8$	- 0,48 $\pm 0,8$
3. MnO_2 прокаленный	4,34	0,56 $\pm 0,07$	- 1,2 $\pm 1,2$	- 1,8 $\pm 1,2$
4. MnO_2 воздушно-сухой	5,05	7,10 $\pm 0,14$	21,0 $\pm 0,7$	13,9 $\pm 0,7$
5. Co_2O_3	8,07	2,34 $\pm 0,13$	10,0 $\pm 0,4$	7,7 $\pm 0,41$
6. Co_3O_4 влажный	6,73	4,16 $\pm 0,17$	11,3 $\pm 0,41$	7,1 $\pm 0,44$
7. $CoOOH$ сухой	6,59	8,67 $\pm 0,20$	13,8 $\pm 0,29$	5,13 $\pm 0,35$
8. $CoOOH$ сухой	2,12	2,83 $\pm 0,14$	6,87 $\pm 0,47$	4,04 $\pm 0,49$
9. $Mn + H_2O$	6,66	2,98 $\pm 0,17$	6,30 $\pm 0,47$	3,3 $\pm 0,50$
10. $Mn + H_2O$	6,66	1,93 $\pm 0,14$	5,45 $\pm 0,58$	3,5 $\pm 0,60$

Измерения с образцом N 5 производились дважды с интервалом 3 года. Приведены результаты второго измерения, которые полностью совпали с первыми, в том числе, по содержанию водорода.

Для образцов одинаковых геометрических размеров Co_2O_3 (N 5), влажный Co_3O_4 (N 6) и $CoOOH$ (N 7) количество водорода (величина C_c) меняется в отношении 1:1,7:3,3, а

разность $C_e - C_c$ для первых двух одинакова ($7,4 \pm 0,30$)%, а для $CoOOH$ меньше ($5,1 \pm 0,28$)%. Отсюда видно, что величина $C_e - C_c$ определяется не количеством водорода, а свойствами водородосодержащей структуры.

Наши эксперименты по определению водорода в образцах показывают, что увеличение захвата в золотой фольге, находящейся между счетчиком и образцом, происходит в соответствии с расчетом замедления нейтронов, вызываемого водородом. Т.е. аномальное увеличение захвата не вызывается аномальным замедлением нейтронов в образце. Поэтому, по мнению авторов, величина $C_e - C_c$ не должна зависеть от толщины образцов. Это подтверждается измерениями с образцами $CoOOH$ (N 7 и N 8), которые разнятся по толщине в 3,1 раза, а значения $C_e - C_c$ для них близки соответственно ($5,13 \pm 0,35$)% и ($4,04 \pm 0,40$)%.

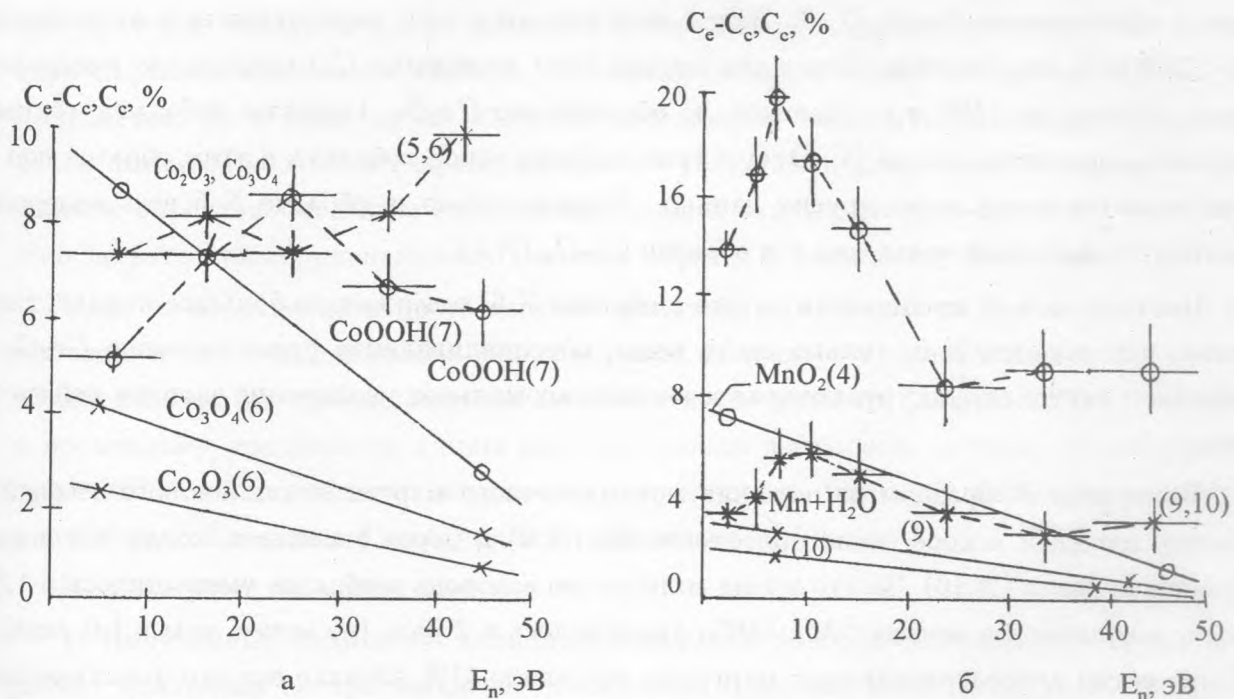


Рис. 1. Энергетическая зависимость разности между экспериментальными (C_e) и расчетными (C_c) значениями относительного увеличения числа захватов нейтронов ядрами кобальта (а) и марганца (б) в водородосодержащих структурах образцов. На рисунках показаны интервалы усреднения и ошибки значений $C_e - C_c$. Сплошные линии – энергетическая зависимость величин C_c . Для каждого образца она помечена теми же значками, что и разности $C_e - C_c$. В скобках указаны номера образцов.

На рис. 1 приведена энергетическая зависимость значений C_c (сплошные линии) и

значений $C_e - C_c$ (точки с ошибками и указанием интервалов усреднения, соединенные пунктиром). Максимальные энергии для приведенных значений определялись тем, что из-за плохого энергетического разрешения нашего спектрометра ($\Delta E/E = 0,35$) при больших энергиях могли сказаться нейтронные резонансы Co ($E_n = 132$ эВ) и Mn ($E_n = 336$ эВ).

Для образцов Co_2O_3 (N 5) и влажного Co_3O_4 (N 6), несмотря на различное содержание водорода, значения $C_e - C_c$ для каждого энергетического интервала практически не различаются, поэтому для этих образцов приведены средние значения, которые возрастают с увеличением энергии. Величины C_c для них много меньше и спадают с ростом энергии из-за возрастающего отклонения сечения захвата нейтронов от закона $1/v$ по мере приближения к резонансу 132 эВ.

Образец Co_3O_4 (N 6) был получен прокаливанием Co_2O_3 . Удаление воды приводит к образованию Co_3O_4 [7, 8]. Затем полученный Co_3O_4 выдерживали в атмосфере со 100%-ной влажностью. Через два месяца (при измерении C_e) количество водорода уменьшилось на 14%, т.к. происходило образование Co_2O_3 . Гидраты кобальта таким способом получить нельзя [8]. Отсутствие гидрата окиси кобальта в этом образце подтверждается и анализом других данных. Следовательно, в образце N 6 весь водород находится в составе воды, как и в образце Co_2O_3 (N 5).

Поэтому можно предположить, что в образце N 6, содержащем большее количество воды, чем образец N 5, только часть воды, обуславливающая существование Co_2O_3 , образует такую структуру, которая вызывает аномальное увеличение захвата нейтронов.

Измерения с образцом из порошка металлического марганца, смешанного с водой, велись дважды: вскоре после приготовления (N 9) и через 5 месяцев, когда вся вода прореагировала (N 10). За это время количество водорода в образце уменьшилось в 1,5 раза, а количество молекул $Mn(OH)_2$ увеличилось в 2 раза (не менее, чем в 1,6 раза). Количество прореагировавшего марганца составило 11%. Однако все это практически не сказалось на величине $C_e - C_c$. Это говорит о том, что молекулы $Mn(OH)_2$ не являются фактором, определяющим величину $C_e - C_c$. Одно из возможных предположений состоит в том, что в этом образце (N 9 и N 10) аномальное увеличение захвата нейтронов ядрами марганца вызывалось структурой, которая образовалась в частицах марганца на границе между марганцем и гидроокисью. На рис. 1б приведены средние значения для этих двух измерений.

Для образца MnO_2 энергетическая зависимость величины $C_e - C_c$ имеет максимум

при энергии нейтронов 18 – 26 эВ. В этом интервале величина $C_e - C_c$ для MnO_2 превышает расчетное значение C_c в 3 раза, достигая $(20 \pm 1,7)\%$.

Все эти факты не могут быть объяснены аппаратурными эффектами, т.к. образцы достаточно тонкие и доля нейтронов, рассеянных водородом, не более 13%. Доля нейтронов, рассеянных на кислороде, марганце или кобальте не превышает в образцах 10%. Это рассеяние не увеличивает суммарные пути, проходимые нейтронами через образец, по сравнению с путями через пустой контейнер [1]. Замедление нейтронов вследствие этого рассеяния приводит к увеличению захвата нейтронов не более чем на 0,2%.

Приведенные факты можно истолковать как указание на существование двух разных явлений, приводящих к увеличению захвата нейтронов ядрами под влиянием водорода. Первое – это обычное замедление нейтронов водородом, регистрируемое по гамма-захвату на золоте. Второе явление, обуславливающее величину $C_e - C_c$, – это приобретение нейтронами под влиянием водородосодержащих структур, включающих ядра марганца и кобальта, свойств, благодаря которым захват нейтронов ядрами увеличивается. Но в отличие от обычного замедления, когда относительное увеличение числа захватов возрастает пропорционально толщине и содержанию водорода, второе явление определяется видом водородосодержащей структуры и не приводит к увеличению захвата, пропорциональному толщине образца и количеству водорода.

Одно из объяснений второго явления может быть основано на предположении, что протоны и нейтроны в наших экспериментах находятся в делокализованных состояниях с размерами, превышающими межатомные расстояния. Это могло бы приводить к временному увеличению длины волн де Бройля нейтронов, которое не сохраняется при выходе нейтронов из отдельных частиц вещества, имеющих водородосодержащие структуры, обладающие необычными свойствами.

В заключение отметим, что:

1) Полученные данные об аномальном влиянии водородосодержащих структур на захват нейтронов не противоречат совокупности данных по рассеянию нейтронов на образцах с водородом, когда регистрация рассеянных нейтронов осуществляется после выхода нейтронов из образцов, в результате их взаимодействия с другими ядрами, как в наших экспериментах по определению водорода с помощью золота.

2) Эти данные не могут быть объяснены на основе современных представлений о свойствах нейтронов и протонов. Они свидетельствуют о необходимости расширения наших знаний о нейтронах и протонах и их взаимодействии внутри вещества, а также о необходимости более глубокого изучения строения и свойств водородосодержащих

материалов.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Шапиро Ф. Л. Труды ФИАН, **24**, 3 (1964). Исаков А. И. *ibid.*, 68.
Попов Ю. П. *ibid.*, 111. Бергман А. А. *ibid.*, 169.
- [2] Бергман А. А., Маликжонов А. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 4, 71 (1972).
- [3] Бергман А. А., Стависский Ю. Я., Челноков В. В. и др. Ядерные константы, Атомиздат, **7**, 50 (1971).
- [4] Бергман А. А., Владимирский К. В., Самсонов А. Е. Краткие сообщения по физике ФИАН, N 11-12, 29 (1995).
- [5] Бергман А. А., Бескорский А. И., Данилов В. Ф. и др. ВАНТ, серия Ядерные константы, вып. 1, 4 (1991).
- [6] Mughabghab S. F., Divadeenam M., Holden N. E. Neutron Cross Sections, **1**, Part A, New York (1981).
- [7] Овчинникова Т. М., Иоффе Э. Ш., Ротнян А. Л. ДАН, **100**, N 3, 469 (1955).
- [8] Смирнов В. И., Абдеев М. А. Известия АН КазССР, серия Металлургия, вып. 2 (12), 97 (1957).

Институт ядерных исследований РАН

Поступила в редакцию 25 июня 1997 г.