

УДК 539.128.4:519.144

НАБЛЮДЕНИЕ ДЛИННОПРОБЕЖНЫХ α -ЧАСТИЦ В ПРОЦЕССЕ ДЕСОРБЦИИ ДЕЙТЕРИЯ (ВОДОРОДА) ИЗ ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ Au/Pd/PdO:D(H)

А. Г. Липсон^{1,3}, А. С. Русецкий, А. Такахаши², Дж. Касааги³

С помощью Si-поверхностно-барьерных детекторов с различной эффективностью, включая dE-E-телескоп, исследована эмиссия заряженных частиц в образцах Au/Pd/PdO:D(H) в процессе экзотермической десорбции дейтерия (водорода). Обнаружено новое свойство поверхности гетероструктур вида Au/Pd/PdO:D и Au/Pd/PdO:H, заключающееся в генерации длиннопробежных α -частиц с энергиями $8.0 \leq E\alpha < 14.0$ МэВ в процессе спонтанной десорбции дейтерия (водорода).

В образцах гетероструктуры Au/Pd/PdO, насыщенных дейтерием электрохимическим методом, наблюдается эмиссия нейтронов [1 – 3] и заряженных частиц (протонов и тритонов) [3, 4], являющихся продуктами DD-реакции. Было установлено, что средний выход DD-продуктов в исследованных образцах составляет $\lambda_{DD} \sim 10^{-23} \text{ с}^{-1}/DD$ -пару и является практически одинаковым для обоих каналов DD-реакции $D(d, n)He^3$ и $D(d, p)T$ [3]. Результаты ядерных измерений в гетероструктуре Au/Pd/PdO:D принципиально подтверждают существование низкоэнергетических ядерных процессов, индуцированных кристаллической решеткой (НЯПИКР) в дейтерированных твердых телах. Между тем, в спектрах заряженных частиц, наблюдавшихся в изученных образцах при экзотермической десорбции дейтерия [3], помимо характерного DD-пика (3, 0 МэВ протоны) часто наблюдается высокоэнергетическая компонента, в области $E > 8.0$ МэВ.

¹Институт физической химии РАН, Москва 117915, Россия.

²Osaka University, Faculty of Nuclear Engineering, Osaka 565, Japan.

³Tonoku University, Laboratory of Nuclear Science, Sendai 982, Japan.

Аналогично частицы высоких энергий детектируют и при бомбардировке Pd и Ti подложек низкоэнергетическими дейтеронами [5, 6]. Существенно, что такая высокоэнергетическая компонента не характерна как для DD -спектров, так и для спектров α -частиц природных альфа излучателей (рядов радона и тория). Эмиссия заряженных частиц более высокой энергии (в сравнении с продуктами DD -реакции) может указывать на наличие специфических механизмов инициирования НЯПИКР, связанных, например, с концентрированием фоонов в твердых телах [7] или проявлением многочастичных реакций $3D$ $4D$ -типа [8].

Целью настоящей работы явилось исследование высокоэнергетической компоненты спектра заряженных частиц в гетероструктуре $Au/Pd/PdO:D(H)$ с помощью различного вида Si -поверхностно-барьерных (SSB) детекторов, включая корректное определение энергии и типа эмитируемых частиц и сравнение их спектров со спектрами естественного фона.

Для проведения измерений спектров заряженных частиц применяли как индивидуальные SSB-детекторы с различной эффективностью, так и dE - E -пару (телескоп). В первой серии экспериментов использовали SSB-детектор ORTEC толщиной $h = 150$ мкм и площадью $S = 100$ мм² (детектор 1). Расстояние от поверхности образца до входа детектора составляло $x = 1.0$ см. Для исключения детектирования электромагнитных наводок в схеме регистрации выставлялся порог дискриминации, равный 350 кэВ. Эффективность детектора 1 в используемой геометрии измерений определялась с помощью Am^{241} α -источника и составила $\epsilon_1 = 3.3\%$. Для более детального исследования спектров заряженных частиц применялся высокоэффективный SSB-детектор большой площади (детектор 2) $S = 900$ мм² ($h = 150$ мкм) с эффективностью $\epsilon_2 = 14.0\%$. Измерения с детекторами 1 и 2 проводились в вакууме с остаточным давлением $P = 10^{-3}$ Торр, обусловленным десорбцией $D(H)$ из образцов. С целью определения типа эмитируемых частиц и корректного измерения их спектров использовали dE - E -телескоп, состоящий из "тонкого" dE -детектора ($h = 20$ мкм) и "толстого" E -детектора ($h = 100$ мкм). Пара детекторов оперировала во временном окне совпадений (TDC) равном $\Delta\tau = 20$ нс. Вся измерительная система выполнена на базе усилительных блоков ORTEC в стандарте КАМАК [5]. Существенно, что требование совпадения сигналов dE и E -детекторов практически полностью исключает электромагнитные наводки и позволяет однозначно идентифицировать тип детектируемых частиц. Детектирование частиц с помощью dE - E -телескопа осуществляли при атмосферном давлении воздуха. С помощью специальных фиксирующих винтов образец закреплялся в непосредственной близости от поверхно-

сти dE -детектора. В использованной геометрии измерений эффективность регистрации α -частиц с энергией $E = 7.7 \text{ МэВ}$ для dE - E -телескопа составила $\epsilon_3 = 3.0\%$.

В качестве образцов использовали тонкие гетероструктуры $Au/Pd/Pd/O$ с эффективной толщиной оксидной пленки $\sim 300 \text{ \AA}$. Непосредственно перед измерениями образцы насыщались дейтерием (водородом) с помощью элеткролиза в 1М-растворе $NaOD (NaOH)$ в $D_2O (H_2O)$ до величины объемного отношения $x = D(H)/Pd = 0.62$ [1 – 3]. После насыщения образцов дейтерием они промывались в чистой воде, высушивались фильтровальной бумагой и фиксировались в держателе, который помещался перед входом соответствующего детектора [3]. В качестве контрольных образцов для измерения фона использовались аналогичные гетероструктуры, не подвергавшиеся до этого насыщению дейтерием (водородом), а также образцы $Au/Pd/PdO:D(H)$, прошедшие вакуумный отжиг при $t = 500^\circ C$ в течение 10 часов.

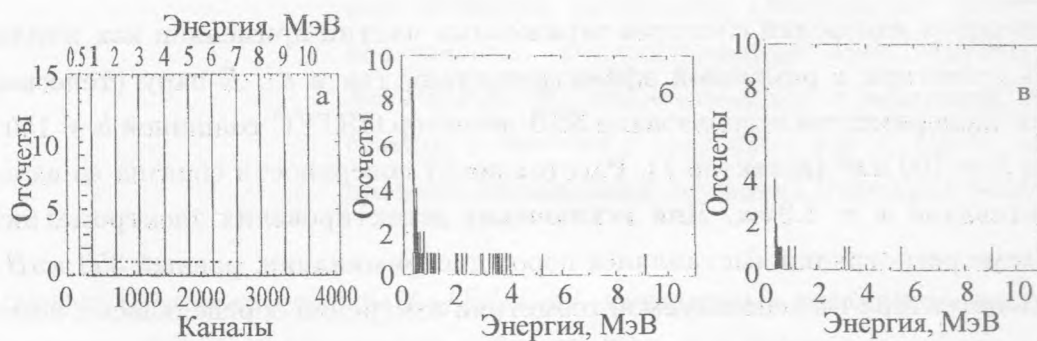


Рис. 1. а) Спектр заряженных частиц фона (экспозиция исходного образца $Au/Pd/PdO$) полученный в вакууме $P = 10^{-6} \text{ Торр}$ с использованием детектора 1. Время непрерывной экспозиции $\tau = 680000 \text{ с}$. б) Спектры заряженных частиц, полученные при экспозиции образцов $Au/Pd/PdO:D$ толщиной $l = 40 \text{ мкм}$ в течение времени $\tau_D = 133180 \text{ с}$ с использованием детектора 1. в) То же для образцов $Au/Pd/PdO:H$, $l = 40 \text{ мкм}$, $\tau_H = 36265 \text{ с}$.

Как следует из рис. 1а, на котором представлен счет детектора 1 в интервале 1.0 – 12.0 МэВ при длительной непрерывной экспозиции контрольного образца $Au/Pd/PdO$, в спектре заряженных частиц полностью отсутствуют события с энергией $E > 8.0 \text{ МэВ}$. Действительно, максимальная энергия естественных α -изотопов ряда радона не превышает 7.7 МэВ. С другой стороны, вероятность появления в установке протонов космического фона с энергиями $E > 3.0 \text{ МэВ}$ невелика, поскольку такие протоны теряют энергию на инициирование (p, n) реакций в атмосфере. Вместе с тем, в

спектрах образцов $Au/Pd/PdO:D$ и $Au/Pd/Pd:H$ (рис. 1б, в), полученных за гораздо более короткие промежутки, чем фоновый спектр (рис. 1а), содержатся события с энергией $E > 9.0$ МэВ. При регистрации спектров заряженных частиц с более высокой эффективностью (детектор 2), количество отсчетов, лежащих в интервале энергий $E \geq 8.0$ МэВ, резко возрастает (рис. 2) даже при еще более коротких временах экспозиции, чем в экспериментах с детектором 1 (рис. 1б, в). Измерения с образцами $Au/Pd/PdO:D$ различной толщины l ($8.0 \leq l \leq 300$ мкм) показали, что интенсивность эмиссии заряженных частиц с энергией $E > 8.0$ МэВ не зависит от толщины образца. Этот факт указывает на поверхностный характер эмиссии длиннопробежных частиц в гетероструктуре $Au/Pd/PdO:D(H)$, в отличие от протонов DD -реакции, интенсивность счета которых резко падает с увеличением толщины образца [3]. Отметим, что использованные в экспозициях образцы (рис. 2, 3) после вакуумного отжига, сопровождающегося удалением из них атомов $D(H)$, демонстрируют спектры, практически неотличимые от фоновых (рис. 1). Поэтому, можно предполагать, что наблюдение заряженных частиц с энергиями $E \geq 8.0$ МэВ становится возможным лишь при наличии дейтерия или водорода в образцах гетероструктуры $Au/Pd/PdO$. Данное предположение подтверждается при длительных экспозициях образцов $Au/Pd/PdO:D(H)$ с использованием $dE-E$ -телескопа, в экспериментах с которым получена наибольшая статистика.

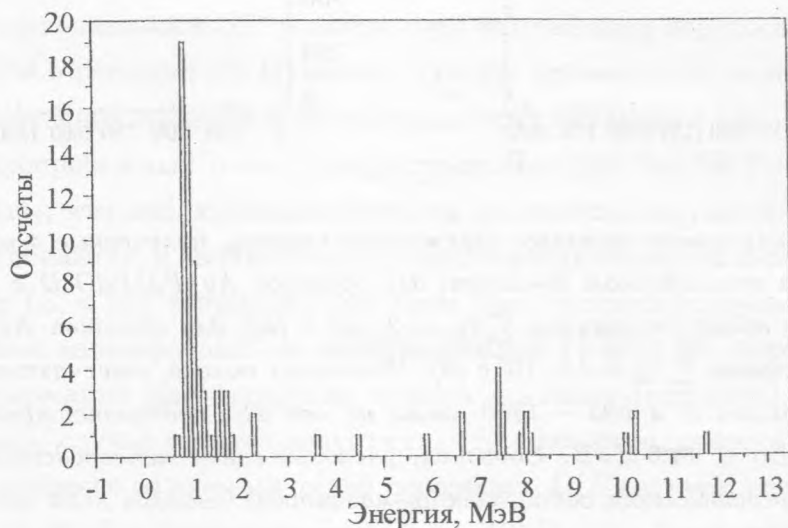


Рис. 2. Типичный спектр заряженных частиц для образцов $Au/Pd/PdO:D$ толщиной $l = 40$ мкм, полученный за время $\tau_D = 24000$ с с использованием детектора 2.

На рис. 3а, б представлены двумерные спектры заряженных частиц, эмитируемых из гетероструктур $Au/Pd/PdO:D$ и $Au/Pd/PdO:H$ соответственно. С учетом потерь на торможение в кремнии [10], можно однозначно утверждать, что эмитируемые в полосе 5.5 – 14.0 МэВ ядерные продукты представляют собой α -частицы. Средние значения интенсивности α -эмиссии в интервале $8.0 \leq E \leq 14.0$ МэВ, полученные в экспозициях с использованием dE - E -телескопа, являются статистически значимыми и составляют: $\langle I_\alpha \rangle_D = (6.8 \pm 1.1) \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$ в телесный угол 4π для $Au/Pd/PdO:D$ (рис. 3а) и $\langle I_\alpha \rangle_H = (5.2 \pm 1.7) \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$ в 4π для $Au/Pd/PdO:H$ (рис. 3б). Полученные значения интенсивностей эмиссии длиннопробежных α -частиц в пределах ошибок измерений согласуются с аналогичными величинами, наблюдавшимися в экспериментах с индивидуальными SSB-детекторами 1 и 2.

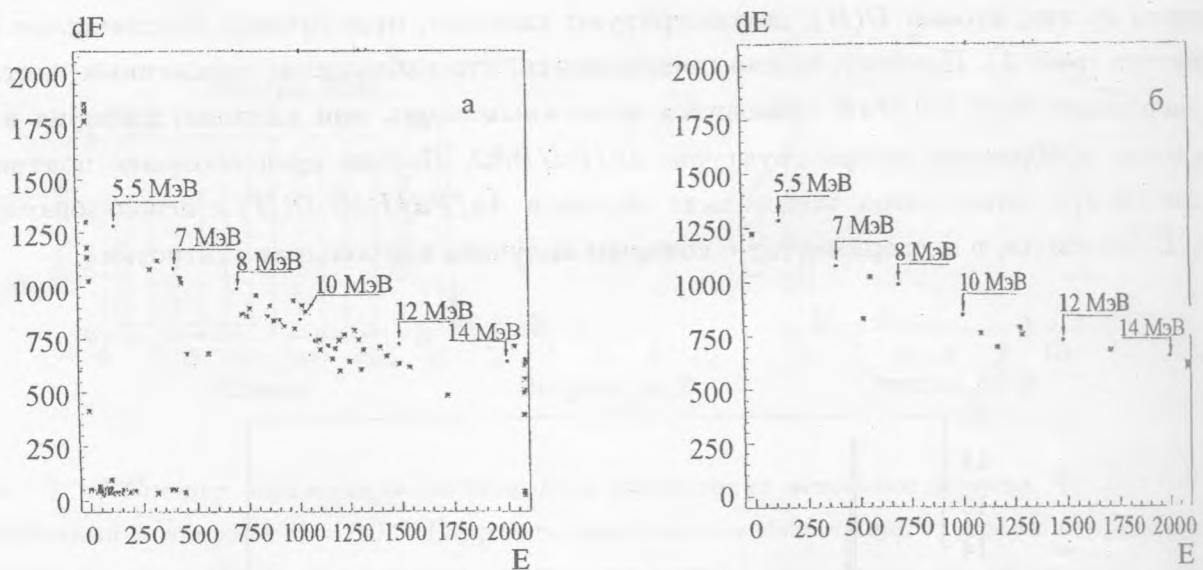


Рис. 3. Суммарные двумерные спектры заряженных частиц, полученные с использованием dE - E -телескопа при атмосферном давлении: для образцов $Au/Pd/PdO:D$ с толщиной $l = 40 - 60$ мкм, полное время экспозиции $\sum \tau_D = 2 \cdot 10^6$ с (а); для образцов $Au/Pd/PdO:H$ с аналогичными толщинами $\sum \tau_H = 4.5 \cdot 10^5$ с (б). Наклонная полоса, отвечающая интервалам 200 – 2000 канал по оси E и 600 – 1200 канал по оси dE , соответствует α -частицам с энергиями $5.5 < E_\alpha < 14.0$ МэВ. События, расположенные непосредственно у осей E и dE (одномерно) представляют собой электромагнитные наводки либо космический фон высоких/низких энергий.

Таким образом установлено, что при десорбции атомов дейтерия (водорода) из гете-

роструктур вида $Au/Pd/PdO:D(H)$ наблюдаются высокоэнергетические α -частицы с энергиями $8.0 \leq e_\alpha < 14.0$ МэВ, не регистрируемые ни в естественном фоне, ни при экспозиции контрольных образцов, не содержащих дейтерия (водорода). Отметим также, что эмиссия длиннопробежных α -частиц не наблюдается для металлов, имеющих низкое сродство к водороду (Cu, Al , нержавеющая сталь).

Как указывалось выше, α -частицы с энергией $E_\alpha > 8.0$ МэВ не могут являться продуктом распада природных α -нуклидов, т.к. они обладают гораздо большей энергией. Мало того, максимальная известная энергия α -частиц для короткоживущего изотопа Po^{212m} составляет $E_\alpha = 11/67$ МэВ, тогда как в наших спектрах наблюдаются частицы с $E_\alpha > 12.0$ МэВ. Поэтому природа эмиссии длиннопробежных α -частиц не связана с загрязнением среды α -нуклидами, и ее следует отнести к проявлению НЯПИКР в гетероструктурах $Au/Pd/PdO:D(H)$, стимулированных процессами десорбции дейтерия (водорода).

Одним из возможных механизмов, объясняющих присутствие в спектре длиннопробежных α -частиц, мог бы являться механизм многочастичного синтеза дейтеронов в решетке ($3D$ или $4D$) [9]. Согласно предсказаниям теории, в случае многочастичного синтеза должны генерироваться α -частицы с энергиями 5.75, 7.90, 9.95 и 12.8 МэВ, которые обнаруживаются в спектрах, полученных при использовании $dE-E$ -телескопа (рис. 3а, б). Существует и другая альтернативная модель эмиссии α -частиц (в виде спектрального континуума с энергиями вплоть до 20 МэВ), связанная с распадом составного ядра He^{4*} (образующегося в DD -реакции) при когерентном переносе энергии этого распада на ядра Pd в решетке [7]. Отметим, что обе приведенные модели [9] и [7] годятся только для объяснения эффекта в дейтерированных образцах и никак не учитывают генерацию длиннопробежных α -частиц в гетероструктуре $Au/Pd/PdO:H$. В этой связи, мы предположим, что наблюдаемые эффекты не связаны напрямую с инициированием DD -реакции в образцах, а являются следствием гипотетического α -распада относительно легких ядер ($Z < 50$) в приповерхностном слое гетероструктуры, стимулированного когерентными многофононными возбуждениями (КМВ) [8], формирующимися под действием деформаций при десорбции атомов дейтерия (водорода) из образцов [3]. В рассматриваемом случае следует допустить, что в решетке гетероструктуры на границе $Pd-PdO$ в процессе экзотермической десорбции $D(H)$ -атомов генерируются КМВ с энергией 10 – 15 МэВ и "временем жизни" $t \sim 10^{-22}$ с [11]. Если такие возбуждения непосредственно взаимодействуют с ядрами решетки, то они могут возбудить гигантские резонансы изоскалярного и/или изовекторного типов: $E0(0+)$, $E1(1-)$, $E2(2+)$ и т.д. В

связи с тем, что ширина таких резонансов для легких ядер близка к Вигнеровскому пределу ($\Gamma \sim 5.0 - 8.0 \text{ МэВ}$ [12]), то снятие возбуждения в них будет возможно лишь по каналу α -распада (при α -кластерной структуре этих ядер). В качестве примера рассмотрим возможный α -распад ядра Pd^{108} , разрешенный по соображениям сохранения четности и орбитального момента, при возбуждении в нем гигантского квадрупольного резонанса $E2(2+)$ с энергией возбуждения $W_r = 63A^{-1/3} = 13.2 \text{ МэВ}$ [12]. Предполагается, что энергия W_r подводится к ядру Pd^{108} в виде КМВ в процессе десорбции дейтерия. Тогда $\text{КМВ} + Pd^{108} \rightarrow Ru^{104} + \alpha - Q$, где $Q = +3.80 \text{ МэВ}$ - порог α -распада ядра Pd^{108} . Энергия испущенной α -частицы $E_\alpha = (W_r + R - q) * A(Ru^{104}) / A(Pd^{108}) = 9.10 \text{ МэВ}$, что согласуется с положениями высокоэнергетических событий в спектрах на рис. 1б, в и 3а. Дочерним ядром предполагаемого распада будет стабильный изотоп Ru^{104} . При наличии в приповерхностном слое образцов различных, адсорбированных при электролизе легких примесей, с учетом указанных гигантских резонансов, возбуждаемых при действии КМВ, можно было бы описать весь наблюдаемый спектр длиннопробежных α -частиц (рис. 3а, б).

Применимость обсуждаемой модели ограничивается отсутствием строгих расчетов энергии КМВ и вероятности их возбуждения в неравновесных системах.

Вне зависимости от реального механизма эффекта в настоящей работе обнаружено новое свойство поверхности дейтеридов (гидридов) Pd -вида $Au/Pd/PdO:D(H)$, заключающееся в генерации длиннопробежных α -частиц с энергиями $E_\alpha \sim 8.0 \div 14.0 \text{ МэВ}$. С целью определения механизма обнаруженного эффекта планируются дальнейшие исследования, в том числе с использованием в качестве образцов других металлов с высоким сродством к водороду.

Авторы благодарны Г. Б. Жданову, В. А. Цареву, Г. И. Мерзону, В. А. Рябову и Л. В. Филькову за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] Липсон А. Г., Ляхов Б. Ф., Саков Д. М., Дерягин Б. В. Письма в ЖТФ, **18**, N 20, 58, (1992).
- [2] Липсон А. Г., Ляхов Б. Ф., Саков Д. М. ЖТФ, **66**, N 7, 174 (1995).
- [3] Lipson A. G., Lyakhov B. F., Roussetski A. S., et al. Fusion Tech. **38**(2), 164 (2000).
- [4] Roussetski A. S. in Progress in New Hydrogen Energy, **1**, 345 (1996), Institute of Applied Energy, Tokyo, Japan.

- [5] Yuki H., Kasagi J., Lipson A. G., et al. JETP Lett, **68**(10), 785 (1998).
- [6] Takahashi A., et al. Fusion Tech., **27**(3), 71 (1995).
- [7] Hagelstein P. L. Hyperfine Interaction, **92**(3), 1059 (1994).
- [8] Hagelstein P. L. in Progress in New Hydrogen Energy, **1**, 382 (1996), Institute of Applied Energy, Tokyo, Japan.
- [9] Takahashi A. Fusion Tech., **26**(4T), 451 (1994).
- [10] Anderson H. H. and Ziegler J. F. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements, Pergamon Press, New York, 1977.
- [11] Липсон А. Г., Кузнецов В. А. ДАН, **332**, N 3, 172 (1993).
- [12] Бор О., Моттельсон Б. Структура атомного ядра, **2**, М., Мир, 1977.

Поступила в редакцию 12 июля 2001 г.