

ОБРАЗОВАНИЕ НАВЕДЕННОЙ γ -АКТИВНОСТИ В ПРОЦЕССЕ ИМПУЛЬСНОГО ВЫСОКОВОЛЬТНОГО НАСЫЩЕНИЯ НИОБИЯ В ДЕЙТЕРИРОВАННЫХ ВОДНЫХ РАСТВОРАХ Li_2O

В. Ф. Зеленский, Р. Ф. Поляшенко, А. И. Великов
ННЦ ХФТИ, г. Харьков, Украина

Подані результати вивчення наведеної γ -активності електролітичної ячейки Nb-W в важководному і легководному розчині LiO в процесі імпульсного високовольтного насичення. З високою надійністю (перевищування сигналу над фоном для найбільш інтенсивних ліній спектру 1681 кеВ на величину 6σ) в електролізній ячейці в процесі високовольтного розряду в одномолярних розчинах $\text{D}_2\text{O-Li}$ виявлена наведена активність. В аналогічних дослідах з легкою водою наведена активність не виявлена. Як в дослідах з легкою водою, так і при використанні дейтерійвмістивних електролітів змін у рівню вмістивності ізотопу ^{40}K не виявлено. Розглядаються можливі механізми появи γ -активності.

Представлены результаты изучения наведенной γ -активности электролитической ячейки Nb-W в тяжело-водном и легководном растворах LiO в процессе импульсного высоковольтного насыщения. С высокой надежностью (превышение сигнала над фоном для наиболее интенсивных линий спектра 1681 кэВ на величину 6σ) в электролизной ячейке в процессе высоковольтного разряда в одномолярных $\text{D}_2\text{O} - \text{Li}$ растворах обнаружена наведенная активность. В аналогичных опытах с легкой водой наведенной активности не обнаружено. Как в опытах с легкой водой, так и при использовании дейтерийсодержащих электролитов изменения уровня содержания изотопа ^{40}K не обнаружено. Рассматриваются возможные механизмы появления γ -активности.

The results of induced γ -activity of electrolytic cell Nb-W in the heavy-water and lightttt water solution during the pulsed high-volt saturation are presented. The induced γ -activity was detected in the electrolytic cell during the high-voltage discharge in the monomolecular $\text{D}_2\text{O-Li}$ solutions with high reliability (the signal excess over the background for the most intensive spectrum lines 1681 keV by 6σ). The same tests carried out with light-water don't demonstrate the induced activity. In the light-water tests also as on the deuterium-containing electrolyt use the ^{40}K isotope level change was not detected. The probable mechanisms of γ activity occurrence are considered.

ВВЕДЕНИЕ

В последние годы опубликованы работы [1,2], в которых было заявлено, что в процессе электролиза с газовым разрядом в прикатодной области наблюдаются избыточное выделение тепла, эмиссия нейтронов и γ -квантов, а также трансмутация ядер химических элементов на поверхности катода. Как утверждают авторы этих работ, тепловыделение и другие аномальные явления наблюдались в разной степени как в тяжеловодном, так и в легководном растворах 0.5M Na_2SO_4 и 0.5M K_2CO_3 .

Регулярно воспроизводимый радиационный эффект на электролитической ячейке, работающей в режиме газового разряда с катодом из прессованного порошка никеля, получен в работе [3]. Показано, что если никель предварительно дейтерировать, то появляется наведенная γ -радиация с периодом полураспада $T_{1/2} \sim 3$ ч. В то же время проведенная в работе [4] специальная проверка вышеуказанных результатов показала, что с точностью до ошибки эксперимента, которая не превышала 3%, не было зафиксировано ни избыточной энергии, ни ядерного излучения при всех концентрациях D_2O в электролите. Эксперименты проводились на различных метал-

лах в 0.5M K_2CO_3 электролите, для приготовления которого использовали легкую и тяжелую воду (99.8%), а также их смеси.

На протяжении уже более 7 лет публикуются работы R. Natoya, где предъявляются все новые и новые данные в пользу протекания низкотемпературных ядерных реакций в процессе электролиза в тяжелой и легкой воде. В частности, этим автором обнаружена генерация ^{40}K в процессе электролиза в 0.3 молярном K_2CO_3 в легководном растворе при использовании пористого никеля в качестве катода. В случае использования в качестве катода платины дополнительно получены пики K^{43} [5].

Учитывая противоречивость упомянутых результатов и важность вопроса, нами была поставлена настоящая работа. Было изучено появление наведенной γ -активности электролизной ячейки после импульсного высоковольтного насыщения ниобиевого катода водородом и дейтерием.

СОЗДАНИЕ НИЗКОФОНОВОГО γ -СПЕКТРОМЕТРА И ОТРАБОТКА МЕТОДОВ ИЗУЧЕНИЯ СПЕКТРОВ

Как известно, регистрация γ -излучения низкой интенсивности представляет собой серьезную зада-

чу. В связи с этим в наших работах, прежде всего, были предприняты усилия по подавлению фона.

Для размещения γ -спектрометрического стенда было выбрано удаленное от работающих электрофизических установок помещение с толстыми бетонными перекрытиями и кирпичной кладкой.

В нем была сооружена защищенная свинцом толщиной 40 мм камера стенда, рассчитанная на использование крупногабаритных детекторов с азотным охлаждением типа ДГДК-50 и ДГДК-125. В камере был вмонтирован детектор ДГДК-50. Эффективность регистрации γ -квантов (К) этим детектором представлена графически на рис. 1.

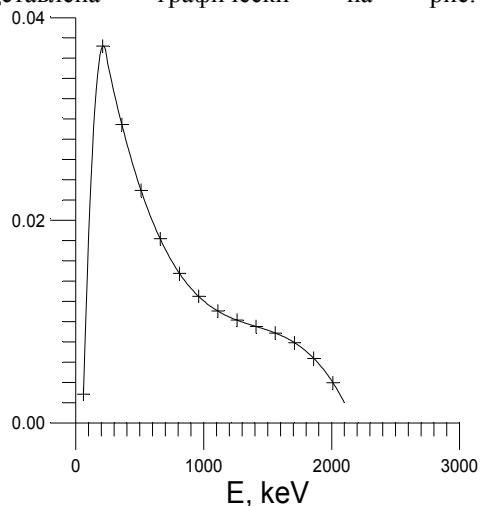


Рис. 1. Эффективность регистрации γ -квантов (К) детектором ДГДК-50

Для определения эффективности подавления природного фона γ -излучения в камере детектора были проведены γ -измерения при открытом детек-

торе (детектор размещен в том же помещении рядом с камерой) и при расположении его в камере с полной защитой. Набор спектров проводился в течение одного часа. Количественно эффективность определялась величиной частного от деления сумм, зарегистрированных спектрометром γ -квантов в первой и второй сериях измерений. Эффективность подавления фона различных диапазонов энергии свинцовой защитой представлена в табл. 1. Как показали измерения, применение стоп-нейтронов позволяет дополнительно снизить фон на 12...15%.

Удаление выбранного рабочего помещения от крупных электрофизических установок позволило избежать влияния электромагнитного излучения от них на измерения излучений. Температура в камере детектора поддерживалась с точностью до $\pm 1^\circ$. Калибровка спектрометра проводилась как по образцовым источникам γ -излучения (Am, Na, Co), так и по пикам излучения собственного фона.

Так как в экспериментах использовался литий, содержащий в качестве примеси ^{40}K , то на спектрограммах всегда имелся хорошо выраженный пик 1461 кэВ. Кроме того, на них всегда присутствовали пики 511 и 2615 кэВ. Это давало возможность производить калибровку спектрограмм по этим трем пикам (к тому же достаточно равномерно удаленным друг от друга). Опыт показал, что при длительной регистрации спектрограмм эталонные пики могут смещаться по оси энергии. На рис. 2 представлены пики фонового излучения в области 1461 кэВ, зарегистрированные в течение двух последовательных пятичасовых интервалов времени при непрерывном наборе данных излучения. Как следует из рисунка, пики в максимуме сместились на величину 3 кэВ, что свидетельствует об изменении калибровки спектрометра во времени. С этим возникали трудности идентификации пиков.

Таблица 1

Эффективность подавления фона в камере γ -детектора

Диапазон энергий, кэВ	Эффективность подавления фона	Диапазон энергий, кэВ	Эффективность подавления фона
50...5000	32, 68	1000...1500	17, 83
100...3500	39, 26	1500...2000	11, 85
50... 300	42, 01	2000...3000	8, 27
300...500	27, 00	3000...5000	1,02
500...1000	18, 00	-	-

В некоторых случаях пики, в том числе калибровочные, расслаивались на два. Чтобы избежать связанных с этим погрешностей (особенно при статистической обработке спектров) возникла необходимость проводить усреднение импульсов. В работе усреднение импульсов (Y) вокруг канала (N) производилось по пяти каналам по формуле:

$$Y_{cp} = \{Y(N-2) + 2Y(N-1) + 3Y(N) + 2Y(N+1) + Y(N+2)\} / 9 \quad [6].$$

В связи с возможностью изменения фона в течение

длительных экспериментов было принято за правило производить регистрацию фона до и после эксперимента.

Были разработаны методы обработки спектрограмм фонового излучения. Принималось во внимание, что его флуктуации носят вероятностный характер и распределены по нормальному закону. В среднем в различные интервалы времени оно довольно стабильно. Поэтому спектрограммы фона обрабатывались с применением формул математической статистики [7].

Как показали измерения, среднее квадратическое отклонение импульсов фона во всем диапазоне энергий спектров (в наших опытах 100...2000 кэВ) не превышали уровней 3σ . При грозовых разрядах в диапазоне 100...200 кэВ регистрировались избыточные всплески излучения. Это учитывалось при обработке спектрограмм.

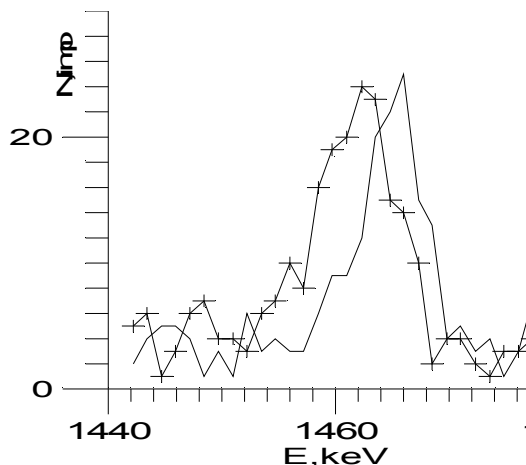


Рис. 2. Смещение пиков вследствие изменения калибровки спектрометра

Преобразование спектрограмм и статистическая обработка спектров производились машинным методом. Для этого были разработаны программы, позволяющие автоматизировать эту работу.

В связи с флуктуациями в калибровке спектрограмм в процессе 5-ти часовых экспозиций набора данных каждая из спектрограмм калибровалась отдельно. Для определения средних значений импульсов фона производился набор 30 спектрограмм. Уровень 3σ принимался как внешний для импульсов фона. Если зарегистрированное число импульсов превышает внешний уровень фона на величину более 3σ , то излучение считалось не фоновым и рассматривалось как наведенная γ -активность.

Параллельно производился просмотр графиков спектрограмм. Графический анализ позволял исследовать спектры, сопоставляя, накладывая друг на друга спектрограммы; сравнивать спектры с уровнями σ и т. п.

РАЗРАБОТКА УСТАНОВКИ ДЛЯ ВЫСОКОВОЛЬТНОГО ИМПУЛЬСНОГО НАСЫЩЕНИЯ МЕТАЛЛОВ ВОДОРОДОМ И ДЕЙТЕРИЕМ

Насыщение металлов производилось методом электролиза в импульсном режиме при использовании в качестве электролита одномолярных растворов D_2O+Li и H_2O+Li . Было создано устройство (рис.3), с помощью которого через электролитическую ячейку периодически разряжается батарея конденсаторов емкостью 200...300 мкФ,

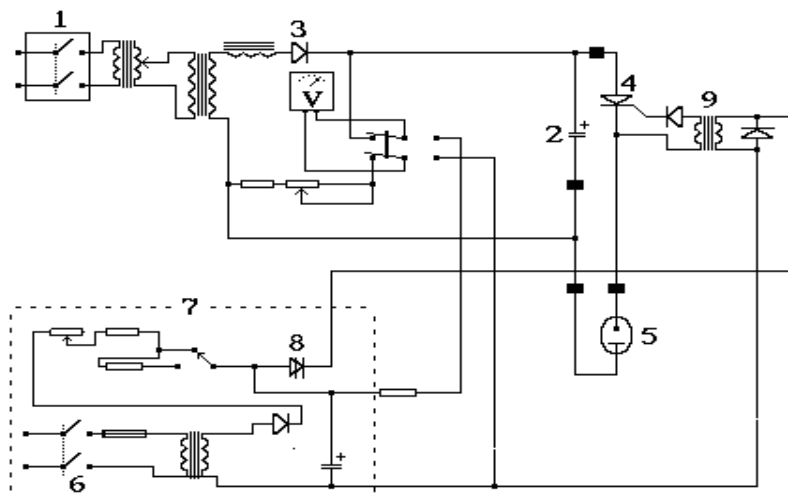


Рис. 3. Генератор импульсов тока для электролиза

заряжаемая до напряжения 200...600 В. С целью предотвращения искровых разрядов, которые возникают при применении механических переключающих устройств в высоковольтных цепях, был реализован тиристорный вариант коммутации тока.

Устройство работает в режиме однополупериодного выпрямления тока. При включенном рубильнике (1) в течение полупериода переменного тока положительной полярности за время ~ 1 мс конденсатор (2) емкостью 300 мкФ заряжается через диод (3). При этом тиристор (4) заперт, и ток через электролизер (5) не идет. При последующем включении ру-

бильника (6) начинают генерировать импульсы тока реле времени (7).

Тиристор отпирается каждым импульсом тока, поступающим на управляющий электрод через трансформатор (9). Конденсатор разряжается через электролизер. Разряд конденсатора происходит импульсами тока экспоненциальной формы с длительностью на полуширине 0,3...0,5 мс. Напряжение на входе тиристора падает, и при понижении до критического значения последний запирается. Далее при положительной полярности синусоидального тока повторяется зарядка конденсатора, и устройство переходит в состояние ожидания управляющего им-

пульса тока от реле времени. Периоды посылок управляющих импульсов тока регулируются в пределах от одной до десяти посылок в секунду.

Эксперименты проводились с вариацией импульсного напряжения в пределах 200...600 В. Выделяющаяся в электролитической ячейке мощность составляла при этом от 6 до 54 Дж / имп. Для исключения перегрева электролит охлаждался потоком воздуха. Температура в электролитической ячейке при наиболее жестком токовом режиме не превышала 40...45° С.

В качестве материала катода использовался ниобий, чистотой 99.8, анодом служил пруток из вольфрама. Катод имел форму диска диаметром 20 мм и толщиной 0.5 мм.

В процессе эксперимента обращенная к аноду сторона ниобиевого катода насыщалась водородом и дейтерием до уровня ~1:1 (атом водорода на атом металла). При этом образцы ниобия деформируются с образованием выпуклости, направленной против потока водорода. С течением времени насыщения они расслаиваются и растрескиваются, сохраняя, однако, до высокого уровня насыщения необходимую целостность. Это делало ниобий удобным объектом исследования аномальных явлений, тем более, что в наших предыдущих исследованиях был обнаружен выход из ниобия высокоэнергетичных частиц [10]. Эксперименты проводились в такой последовательности: измерение фона в камере детектора с помещенным в ней электролизером в сборке (с исходным образцом и электролитом);

извлечение электролизера из камеры и электролитическое импульсное насыщение образца водородом или дейтерием в течение заданного промежутка времени;

возврат электролизера в камеру детектора и измерение наведенной активности;

извлечение электролизера из камеры и повторное измерение фона в ней;

статистическая обработка и сопоставление экспериментальных данных.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Установлено, что после экспериментов с насыщением ниобия в дейтерийсодержащих электролитах γ -излучение от электролизера с образцом и электролитом в отдельных диапазонах энергии спектра превышает исходное значение.

Анализ данных в опытах раздельно по файлам спектрограмм позволил выявить пики, превышающие среднее значение фона более чем на 3σ в диапазоне энергии 200...2000 кэВ, причем некоторые из них повторялись в четырех сериях экспериментов.

Общее число пиков излучения, выявленных в экспериментах при 220 В, составляло 7. В экспериментах при 600 В выявлено 13 пиков. Данные о пиках с импульсами, превышающими по величине среднее значение фона более чем на 4σ , выявленных в экспериментах после электролиза при 220 В, представлены в табл. 2.

Таблица 2

Выявленные пики наведенной активности после электролитического насыщения ниобия дейтерием

Серия опытов	E, кэВ	N, имп	Ед. sgm	Srфон, имп.	SGM	Макс. фон
5	450	795	5.00	560	47	700
2	450	941	8.11			
1	450	749	4.02			
2	567	732	4.42	498	33	605
4	567	729	4.36			
1	567	790	5.51			
2	1217	778	5.28	472	87	598
6	1217	802	4.24			
4	1217	829	4.63			
1	1217	1114	8.34			
3	1431	496	4.92	235	53	336
2	1431	488	4.77			
5	1431	480	4.62			
1	1433	503	4.19	281	53	412
6	1434	501	4.51	262		351
6	1681	319	4.75	129	40	204
1	1681	446	8.43			
3	1682	299	5.87	117		205
4	1917	236	4.80	92	30	177
3	1917	247	5.17			
6	1917	267	5.83			

По данным высвечивания γ -квантов в пиках с энергией 1681 кэВ с высокими значениями превы-

шения над уровнем средних значений фона определены период полураспада и скорость накопления

ядер нуклида. Для этого были найдены средние значения импульсов в пиках первого и второго набора данных после электролиза. После вычитания из них максимальных значений фона был найден период полураспада нуклида-23.8 ч.

Вычислено количество радиоактивных ядер, образующихся ежесекундно при электролизе, получено значение $\sim 0,589 \text{ с}^{-1}$. Если учесть, что радиоактивные ядра образуются только в периоды импульсов тока длительности $\sim 0.3..0.5 \text{ м/с}$, то это соответствует образованию ядер в моменты импульсов тока в секунду ~ 1500 ядер в сек.

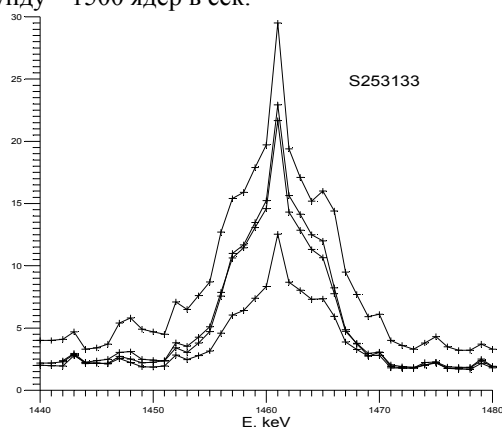


Рис. 4. Совпадение линий ^{40}K в опытах до и после электролиза

Сделана попытка идентификации пиков спектрограмм по пикам излучения ^{96}Nb . По наиболее сильному пику 778 кэВ ^{96}Nb выявлены пики на четырех спектрограммах с интенсивностью на уровне 4,09; 3,84; 3,52 и 3,07 единиц σ выше средних значений фона. Проведена оценка периода полураспада радионуклида по величине зарегистрированных импульсов в трех сериях экспериментов. Как и в первом случае, из трех файлов первого и второго набора данных после электролиза найдены средние значения количества зарегистрированных импульсов. После вычитания из них максимальных значений фона был найден период полураспада 18,57 ч, при табличном значении для ^{96}Nb , равным 23,55 ч. Возможно, различие величин связано с флуктуациями фона. Однозначное определение периода полураспада (и, соответственно, однозначная идентификация пиков) могут быть достигнуты только при существенно большем превышении излучения над средними значениями фона. Вычислением количества радиоактивных ядер ^{96}Nb , образующихся ежесекундно в периоды импульсов при электролизе, найдено значение $\sim 40 \text{ с}^{-1}$.

Иной характер излучения наблюдался в экспериментах с электролитом $\text{H}_2\text{O} + 1\text{M Li}$. В этом случае в спектрах излучения после электролитического насыщения ниобия не было обнаружено ни одного случая превышения пиков над уровнями фона на величину выше 3σ .

В связи с этим интересно обратить внимание на то, что, как указывалось во введении в работе [5] на-

блюдался процесс генерации изотопов ^{40}K и ^{43}K в процессе низковольтного электролиза в растворе K_2CO_3 в легкой воде. В нашем случае не наблюдается превышения рабочего спектра над фоном в районе энергий, характерных для этих изотопов (^{40}K – 1461 кэВ, ^{43}K – 371 и 614 кэВ) при насыщении как в легководном, так и в тяжеловодном электролите. На рис. 4 показан фрагмент спектрограммы, иллюстрирующий расположение уровней средних значений фона в камере детектора (нижняя линия), средних значений фона в присутствии в камере электролизера и излучения высвечивания после импульсного насыщения ниобия в одномолярном растворе $\text{D}_2\text{O} + \text{Li}$ в наших экспериментах (совпадающие линии) и уровня 3σ над средним фоном в камере детектора (верхняя кривая). Как следует из рисунка, концентрация ^{40}K осталась неизменной.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Обнаружено с высокой надежностью (превышение сигнала над фоном для наиболее интенсивных линий спектра - 1681 кэВ на величину 6σ) появление в электролизной ячейке в процессе высоковольтного импульсного насыщения в одномолярных $\text{D}_2\text{O} + \text{Li}$ -растворах наведенной активности. Последнее дает основание утверждать, что в процессе высоковольтного импульсного насыщения ниобия в дейтерированных водных электролитах ($\text{D}_2\text{O} + \text{Li}$) в электролизной ячейке происходят ядерные реакции.

Гораздо менее определенно можно говорить сегодня о природе ядерных реакций, обусловивших появление наведенной γ -активности в наших опытах. Очевидно, что это не могут быть традиционные реакции горячего D-D синтеза хотя бы потому, что вероятность протекания таких реакций при энергиях дейтронов в пределах 100...600 эВ исключительно мала, и в этом смысле появление в наших опытах радиоактивных изотопов должно быть отнесено к «аномальным» явлениям. Для объяснения указанного уровня наведенной γ -активности необходимо было бы допустить возможность существования в наших опытах значительных потоков высокоэнергетических (примерно энергии «гигантского резонанса»: 10...20 МэВ) γ -квантов или потоков нейтронов. Ни то, ни другое в этих опытах не наблюдалось.

В ряде случаев ядерные реакции могут идти с участием заряженных частиц – протонов или дейтронов. Однако для протекания таких реакций со скоростями, достаточными для объяснения полученных результатов, необходимы частицы с энергиями, существенно более высокими, чем те, которые имеются в условиях пробоя.

Можно указать два возможных сугубо гипотетических источника высокоэнергетических частиц в наших опытах. Первый – протекание в условиях опыта ядерных реакций трех тел, на возможность существования которых указывается в работе Такахаша А. [8].

Вторым источником быстрых частиц мог бы явиться процесс коллективного взаимодействия

электронного пучка с ионами плазмы, впервые привлеченный для объяснения аномальных ядерных явлений в работе [9]. В результате большого различия масс электрона и тяжелых заряженных частиц дейтроны в условиях импульсного насыщения и газового разряда в силу действия этого механизма могут приобретать энергию, достаточную для преодоления кулоновского барьера и протекания ядерных реакций. Для изучения природы явления необходимы дальнейшие исследования.

ЛИТЕРАТУРА

1. Tadahiko Mizino, Tadayoshi Ohmon, Tadashi Akimoto Detection of Radiation Emission, Heat generation and Elements from a Pt Electrode Induced by Electrolytic Discharge in Alkaline Solutions. Proceeding ICCF-7, Vancouver, April (1998)
2. T. Ohmori, T. Mizuno Strong excess energy evolution, new element production, and electromagnetic wave and/or neutron emission in the light water electrolysis with a tungsten cathode. Proceeding ICCF-7, Vancouver, April (1998).
3. Ю.Н. Бажутов, С.Н. Яшин. Регулярно воспроизводимые радиационные эффекты при электролизе с газовым разрядом // *Материалы 6-й Российской конференции по холодной трансмутации ядер химических элементов (РКХТЯ-6)*. Дагомыс, Сочи, 28.09-03.10.1998. Москва, 1999.
4. Я.Б. Скуратник, Н.И. Хохлов, А.К. Покровский.

s

Оценка избыточного тепла при сопутствующей трансмутации ядер при электролизе в условиях протекания плазменного разряда в прикатодной области // *Материалы 7-й Российской конференции по холодной трансмутации ядер химических элементов (РКХТЯ-7)*. Дагомыс, Сочи, 27.09-02.10.1999. Москва, 2000.

5. R. Natoya. Determination of Cold Nuclear Transmutation in an Electrolytic Cell with a Platinum Cathode (6th RCCNT, Dagomis, 28 September – 5 October, 1998).

6. G.W. Very Low Statistics // *Nuclear Instruments & Method.*, 1978, v.153, p.449-455.

7. В.Е. Гмурман. *Теория вероятностей и математическая статистика*. М.: «Высшая школа». 1972, 368 с.

8. A. Takahashi et al. // *The Science of Cold Fusion Proc ACCF2*. Como (Italian Physical Society 1992) 1991/93.

9. В.Ф. Зеленский. О природе явлений, инициируемых реакции синтеза ядер дейтерия в веществах. // *Вопросы атомной науки и техники, серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*, 1991, в.2, №56, с.34-55.

10. В.Ф. Зеленский, И.М. Неклюдов, Р.Ф. Поляшенко, А.М. Шкилько В.В. Борисов // *Материалы 1 Российской конференции по холодному ядерному синтезу*. Москва. 1994, с.172-178.