# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ НИЗКОМОЛЕКУЛЯРНОГО ФТОРПОЛИМЕРА ДЛЯ СТЕНОК КАМЕР ХРАНЕНИЯ УЛЬТРАХОЛОДНЫХ НЕЙТРОНОВ

К. Дюзинг<sup>а</sup>, П. Гельтенборт<sup>6</sup>, К. Плонка<sup>а</sup>, Ю. Н. Покотиловский<sup>в, 1</sup>

<sup>а</sup> Институт ядерной химии, Университет им. И. Гутенберга, Майнц, Германия

<sup>6</sup> Институт Лауэ–Ланжевена, Гренобль, Франция

<sup>в</sup> Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Приводится описание установки и излагаются результаты исследования низкомолекулярного фторполимера CF<sub>3</sub>(CF<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-O-CF<sub>2</sub>-O-(CF<sub>2</sub>)<sub>3</sub>CF<sub>3</sub>, перспективного для покрытия стенок камер хранения ультрахолодных нейтронов. Интерпретация результатов измерений проведена в модели многослойного комплексного квантово-механического потенциала стенок камеры.

We describe the installation and report on the results of investigation of ultracold neutrons storage in the chamber covered with the low molecular weight fluoropolymer  $CF_3(CF_2)_3$ -O- $CF_2$ -O- $(CF_2)_3CF_3$ . This polymer is a promising coating material for the storage of ultracold neutrons (UCN) in closed volumes covered with polymer film. The results of measurements were interpreted in a model of complex multilayer quantum-mechanical potential, describing the walls of storage volumes.

PACS: 28.20.-v; 29.90.+r; 23.40.-s; 13.30.Ce

## введение

Точное знание величины времени жизни нейтрона необходимо для уточнения параметра Стандартной модели — матричного элемента  $V_{ud}$ , а также в космологии и астрофизике — для описания рождения элементов на ранней стадии Вселенной. Недавние обзоры по этой тематике опубликованы в [1,2].

Известны два метода измерения времени жизни нейтрона. В первом (исторически) измеряется количество нейтронов в контролируемом объеме пучка медленных нейтронов и одновременно скорость счета продуктов распада нейтронов из этого объема, в последних экспериментах — протонов. В этом методе необходимы два абсолютных измерения: плотности нейтронов в пучке и числа захваченных и сосчитанных протонов.

Второй метод состоит в хранении ультрахолодных нейтронов (УХН) [3] в материальной или магнитной ловушке и измерении зависимости от времени числа оставшихся в ловушке нейтронов.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>E-mail: pokot@nf.jinr.ru



Рис. 1. Сводка результатов измерений времени жизни нейтрона за последние 20 лет: ромб — пучковый эксперимент [4]; кружки — пучковый эксперимент [5,6]; треугольники вверх — эксперимент с хранением УХН в камере, покрытой жидким Fomblin [7,8]; треугольник вниз — эксперимент с хранением УХН в камере, покрытой замороженным полимером PFPOM [9]; звезда хранение УХН в магнитной ловушке [13]; квадраты — хранение УХН с детектированием нагретых нейтронов, покинувших камеру хранения [10–12]; пятиугольники — хранение УХН в магнитной ловушке [14, 15]; шестиугольник — эксперимент с хранением УХН в камере, покрытой замороженной мазью Fomblin [16]

Существует заметное расхождение в величине времени жизни нейтрона, измеренного этими двумя методами в наиболее точных экспериментах за последние двадцать лет. Рис. 1 показывает сводку таких измерений времени жизни нейтрона: два пучковых эксперимента [4,5] (поправка результата последнего в [6]), пять экспериментов по хранению УХН в материальных ловушках [7–9, 16] и [10] с последующими поправками последнего в [11, 12] и первые успешные эксперименты по хранению УХН в магнитных ловушках [13–15]. Комментарии по поводу экспериментов [7,9] содержатся в [17,18]. Среднее значение из пучковых экспериментов (после поправки [6]) дает величину времени жизни  $\tau_n = 888,0 \pm 2,1$ , из экспериментов по хранению УХН (после двух поправок [11, 12]) следует величина  $\tau_n = 879,1 \pm 0,4$ . Расхождение между двумя методами после учета последних результатов [15, 16] превышает четыре стандартных отклонения.

Что может быть причиной такого расхождения? Наиболее вероятно, что имеются систематические ошибки в одном из методов или в обоих. Согласно [5] в пучковом эксперименте наибольшая неопределенность содержится в определении потока холодных нейтронов. Большая, по сравнению с методом хранения УХН, величина измеренного времени жизни нейтрона в пучковом методе может быть, например, связана с тем, что часть протонов не детектируется. В методе хранения УХН к уменьшению измеренного времени жизни нейтрона могут приводить недостаточно точно контролируемые потери УХН в ловушках — наиболее серъезная проблема в этом методе.

Рассматриваются и гораздо более фундаментальные и экзотические сценарии, приводящие к потерям УХН в ловушках: осцилляции нейтрон – зеркальный нейтрон [19] или прохождение нейтронов в дополнительные измерения пространства или в «мир на бране» [20] (эксперименты типа «свечение сквозь стену»).

#### 1. ПРОБЛЕМЫ ХРАНЕНИЯ УХН В ЛОВУШКАХ

Потери нейтронов в ловушках с материальными стенками вызваны захватом и нагревом УХН в столкновениях со стенками и атомами остаточного газа. Точность определения времени жизни нейтрона в этом методе зависит от величины этих потерь. Экспериментальные усилия в направлении повышения точности связаны с уменьшением этих потерь и с поиском наилучшего способа экстраполяции измеренного времени хранения УХН к величине константы распада свободного нейтрона. В некоторых экспериментах [7, 8, 10–12] эти поправки (разница между измеренным временем хранения УХН в ловушке и экстраполированным временем жизни свободного нейтрона) были довольно велики и превышали на порядки величины объявляемую погрешность времени жизни. Поэтому наиболее очевидный путь улучшения точности измерения времени жизни нейтрона методом хранения УХН в ловушках и надежности экстраполяции — уменьшение потерь УХН в ловушках с уменьшением тем самым величины поправок на потери.

Известна аномалия в потерях УХН в ловушках: существенное расхождение между измеренными и предсказанными из расчетов коэффициентами потерь для подавляющего большинства исследованных перспективных материалов с малым сечением захвата нейтронов: Ве, С, D<sub>2</sub>O, льда, твердого кислорода. Особенно велико превышение измеренных потерь над расчетными при низких температурах, где ожидаемые коэффициенты потерь для этих материалов должны быть особенно малы — на уровне  $10^{-6}$ – $10^{-7}$ . Расчеты ожидаемых потерь нейтронов основаны на известных динамических свойствах материалов и на измерениях сечений пропускания нейтронов. Редкие случаи, показывающие удовлетворительное согласие с теоретическими оценками, наблюдены для чистых (предельно очищенных от примесей водорода и хлора) фторполимеров в жидком [21] и замороженном состоянии [9, 22]. Эти полимеры использовались в цитированных экспериментах для покрытия стенок ловушек: например, жидкий Fomblin Y 18/8 [23] при комнатной температуре в работах [7, 8, 10–12].

Потери УХН на поверхности жидкого полимера в общем понятны и происходят в основном из-за нагрева нейтронов на тепловых колебаниях атомов отражающей стенки и квазиупругого нагрева на поверхностных (вязкоупругих) волнах [24,25]. В случае твердых охлажденных поверхностей ловушек УХН механизм аномальных потерь неясен, а главное наблюдение состоит в том, что для уменьшения потерь нейтронов желательно иметь максимально гладкую, чистую холодную поверхность ловушки. Этого удалось достигнуть в случае применения низкотемпературного фторполимера (синтезирован Пермским филиалом РНЦ «Прикладная химия») — смеси сложных фторполиоксиметиленов (молекулярный вес  $\sim 4500$ ) с более низкой температурой плавления (-90 °C) по сравнению с Fomblin в твердом состоянии, замороженным до температуры -160 °C. Он был применен в измерении времени жизни нейтрона [9]. В этом случае был достигнут самый низкий коэффициент потерь  $\approx 2 \cdot 10^{-6}$ , а разница между измеренным временем хранения нейтронов в ловушке и временем жизни нейтрона, полученным экстраполяцией к нулевой частоте соударений со стенками ловушки, достигала ~ 1%. Дальнейший прогресс в улучшении точности этого метода может быть достигнут только путем дальнейшего уменьшения потерь нейтронов в ловушках. Для этого, в частности, необходимо еще более понижать температуру поверхности ловушек. Однако понижение температуры значительно ниже точки отвердевания полимера не оказывается эффективным: из-за большого коэффициента теплового расширения осажденный твердый слой полимера растрескивается и осыпается с поверхности. Для подавления этого явления в [26] был предложен фторполимер с рекордно низкой температурой плавления, ниже -125 °C, синтез которого описан в [27]. Материал покрытия с более низкой точкой плавления может позволить проводить хранение УХН при более низкой температуре и, соответственно, при меньших потерях нейтронов на тепловых колебаниях атомов стенки. Задача заключалась в дальнейшем уменьшении потерь УХН в ловушках из-за нагрева на тепловых колебаниях по сравнению с достигнутыми в [9].

Наилучшей геометрией с точки зрения числа накапливаемых нейтронов и получения максимальной статистики представляется геометрия вертикального цилиндра с поглотителем в верхней части для вариации спектра хранящихся нейтронов [28]. Моделирование показало, что интерпретация результатов в этой геометрии наиболее проста [29].

В рамках подготовки к новому измерению времени жизни нейтрона в материальной ловушке с использованием такого низкотемпературного фторполимера была построена установка и проведены эксперименты по исследованию разных методических аспектов работы с полимером: процедуры осаждения на поверхность, стабильности покрытия, воспроизводимости результатов осаждения, варьирования спектра накапливаемых в ловушке нейтронов с помощью специального поглотителя, проницаемости покрытия для нейтронов. Для всех наблюдений необходимо было построить соответствующие количественные модели.

Эксперименты выполнялись на установке PF2/UCN в Институте Лауэ–Ланжевена [30].

## 2. УСТАНОВКА

Схема установки показана на рис. 2. Объем хранения нейтронов (6) — медный цилиндр с внутренним диаметром 23 см и высотой 100 см (объем 41,5 л), который покрыт изнутри слоем титана. Титан имеет небольшой отрицательный потециал для нейтронов  $E_b = -49.7$  нэВ, слабо отражает УХН, поэтому их время хранения в чистой титановой камере должно составлять доли секунды. Высокая поглощающая способность титанового покрытия в качестве подложки для наносимого полимера позволяет лучше выявить несовершенства полимерного покрытия: нейтроны, или проходящие сквозь микропоры, или из-за недостаточной его толщины, проникают внутрь титана и покидают объем хранения. Это же относится и к нейтронам, имеющим энергию выше граничной энергии полимера. Цилиндр и основание (дно камеры хранения) охлаждаются жидким или газообразным азотом, проходящим по трубкам в основании и 16 концентрическим трубкам (4) на внешней поверхности цилиндра. Конический медный клапан, размещаемый в узле (7), открывает и закрывает снизу входное отверстие в объем хранения диаметром 7 см. Перемещение клапана осуществляется пневматически. Для покрытия камеры хранения жидким полимером внутри камеры располагается распылитель (5), в качестве носителя при распылении используется гелий. Распылитель мог перемещаться по программе в вертикальном направлении с помощью стержня (3) и линейного привода (1). Перемещаемая фотокамера позволяла контролировать и фотографировать процесс распыления и состояние покрытия на всех стадиях. Энергия хранящихся нейтронов могла регулироваться введением сверху в объем хранения нейтронов поглотителя  $(^{10}B)$  в виде горизонтального диска (5), перемещаемого вдоль вертикальной оси. Камера переключателя клапана нейтронов содержит короткий отрезок нейтроновода, присоединяющего камеру хранения нейтронов к под-



Рис. 2. Схема установки. *a)* 1 — линейный привод; 2 — вакуумный клапан и сальник; 3 — стержень вертикального перемещения распылителя и борного поглотителя; 4 — трубки охлаждения на боковой поверхности; 5 — распылитель полимера и борный поглотитель нейтронов; 6 — объем хранения ультрахолодных нейтронов; 7 — узел клапана нейтронов; 8 — камера переключателя клапана нейтронов; 9 — детектор нейтронов. *б*) Фото установки со снятым вакуумным кожухом, на внешней поверхности камеры хранения видны вертикально расположенные трубки охлаждения, боковые детекторы нейтронов, нижнее основание и разводка кабелей. *в*) Фотокамера

водящему нейтроны входному нейтроноводу (рис. 2, *в*) или к выходному нейтроноводу, ведущему к детектору нейтронов (9) (рис. 2, *a*). На боковой поверхности камеры размещены пять миниатюрных детекторов нейтронов (диаметр  $\sim 1$  см) на высоте от основания 4, 24, 44, 64, и 84 см. Рабочим слоем этих детекторов служил тонкий слой <sup>10</sup>B, заряженные частицы регистрировались кремниевыми детекторами PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon Detector, Canberra). Боковые детекторы обеспечивали кроме мониторирования процессов заполнения нейтронами и опорожнения объема хранения также и контроль качества покрытия, регистрируя нейтроны, проходящие сквозь осажденную на поверхность пленку.

Охлаждение камеры хранения обеспечивалось 200-л дьюаром с жидким азотом. Клапаны, контролируемые компьютером, позволяли регулировать ток жидкого или газообразного азота по трубкам охлаждения. Температура цилиндра и основания контролировалась во многих точках сенсорами PT100 (IST, Innovative Sensor Technologies).

# 3. МАТЕРИАЛ И ПРОЦЕДУРА ПОКРЫТИЯ И ИЗМЕРЕНИЯ ХРАНЕНИЯ УХН

Исследуемый фторполимер — относительно низкомолекулярный (молекулярный вес = 520) фторформальдегид CF<sub>3</sub>(CF<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-O-CF<sub>2</sub>-O-(CF<sub>2</sub>)<sub>3</sub>CF<sub>3</sub> (разработка процедуры синтеза в [27], производство — АВСК GmbH, Германия). Свойства полимера: температура плавления  $T_m = -159,3$  °C, плотность в жидком состоянии при комнатной температуре  $\rho_l = 1,73$  г/см<sup>3</sup>, при понижении до температуры, близкой к азотной, плотность увеличивается примерно на 10% (данные от производителя и, частично, полученные в лаборатории Университета Майнца). Такая плотность при низкой температуре соответствует потенциалу для нейтронов ~ 105 нэВ.

В отличие от материалов стенок, используемых для хранения УХН при комнатной температуре, когда нанесение покрытия на стенку проводится в открытой камере при атмосферном давлении, в случае низкотемпературного полимера с высоким давлением паров при комнатной температуре осаждение проводится либо испарением [9], либо разбрызгиванием, как в данной работе.

Процедура покрытия и измерения хранения УХН следующая. Жидкий полимер наливался в стеклянную колбу, воздух откачивался, полимер нагревался до кипения, при этом в колбу подавался чистый гелий, откачиваемый через гибкий тонкий шланг в объем камеры хранения УХН. В трубке полимер конденсировался и разбрызгивался на поверхность камеры в виде мелких капель. Выходная часть шланга с соплом перемещалась по высоте для достижения равномерного покрытия.

Нанесение полимера разбрызгиванием проводилось при температуре стенок камеры, близкой к азотной, при этом полимер осаждался на поверхность в виде снега или рыхлого льда со значительным количеством дефектов (рис. 3). При дальнейшем повышении температуры камеры хранения полимер плавился и равномерно покрывал поверхность. Последующее быстрое охлаждение приводило к отвердеванию поверхности и образова-

нию гладкого покрытия. В течение этого температурного цикла многократно проводился полный измерительный цикл: наполнение камеры хранения нейтронами, выдержка УХН в камере в течение определенного времени и опорожнение камеры на детектор, что иллюстрируется рис. 4. По горизонтали указано астрономическое время, по левой вертикальной шкале — количество нейтронов, оставшихся в камере после соответствующей выдержки УХН в камере, по правой — температура. Числа около точек показывают время выдержки: 5, 50, 100, 300, 500 с. Наблюдается небольшое падение числа нейтронов со временем. Причина этого не вполне ясна, возможно осаждение паров воды из атмосферы из-за несовершенного вакуума. Из рисунка видно, что число накапливаемых нейтронов на свежеосажденную поверхность при азотной температуре очень мало, что говорит о низком качестве покрытия.



Рис. 3. Поверхность фторполимерного покрытия сразу после осаждения на поверхность титановой камеры при азотной температуре



Рис. 4. Временная картина измерений хранения УХН в камере, покрытой фторполимером. Линия показывает временной ход изменения температуры (правая шкала). Точки отражают числа УХН в камере после выдержки в течение 5, 50, 100, 300 и 500 с (левая шкала). Числа на горизонтальной оси указывают астрономическое время измерений

По мере повышения температуры покрытие становится более совершенным, число накапливаемых УХН растет и при температуре -145 °C достигает максимума. В этот момент температуру резко понижали, полимерное покрытие затвердевало, и проводилась основная серия измерений. При этом колебания температуры в пределах 10 °C не влияли на накопление и хранение УХН. В типичных циклах осаждения полимера накапливалось до  $\sim 5 \cdot 10^4$  УХН, что соответствует средней плотности по камере  $\sim 1$  нейтрон/см<sup>3</sup>.

## 4. МОДЕЛИРОВАНИЕ

Поскольку экспериментальные данные сопровождаются количественной интерпретацией, вначале изложим используемый для этой интерпретации формализм.

Усредненная по изотропному угловому распределению, зависящая от скорости нейтрона, вероятность потери нейтрона  $\langle \mu(v) \rangle$  при столкновении с толстой, непроницаемой для УХН стенкой, согласно принятому формализму [3] равна

$$\langle \mu(v) \rangle = 2\eta \frac{\kappa(y)}{y^2}, \quad \kappa(y) = \arcsin y - y\sqrt{1-y^2}, \quad y = \frac{v}{v_b} = \sqrt{\frac{E}{V}}, \tag{1}$$

где v и E — скорость и энергия нейтрона соответственно;  $v_b$  — граничная скорость стенки;  $\eta$  — коэффициент потерь УХН, определяемый комплексным потенциалом U,

зависящим от свойств материала стенки:

$$\eta = -\frac{\operatorname{Im} U}{\operatorname{Re} U}, \quad U = \left(\frac{\hbar^2}{2m}\right) 4\pi \sum_i N_i b_i, \quad V = \operatorname{Re} U, \quad \operatorname{Im} b = -\frac{\sigma}{2\lambda}.$$
 (2)

Здесь m – масса нейтрона;  $N_i$  — атомная плотность *i*-й компоненты материала стенки;  $b_i$  — соответствующая когерентная длина рассеяния на связанных ядрах и  $\sigma$  — сечение неупругих процессов (захват и нагрев) для нейтронов с длиной волны  $\lambda$ .

Для моделирования поведения УХН в камере хранения с учетом гравитационного поля мы следуем формализму [31]. В присутствии тяжести и при равновесном распределении УХН в доступном фазовом пространстве темп потерь нейтронов ( $c^{-1}$ ) определяется уравнением

$$d\int \varrho(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \, d^3 \mathbf{r} \, d^3 \mathbf{v} = -\int \mu(\mathbf{v})(\mathbf{v}\mathbf{n}_{\mathbf{S}}) \, \varrho(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \, d^3 \mathbf{v} \, dS \, dt.$$
(3)

Здесь,  $\rho(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$  — плотность УХН в фазовом пространстве;  $\mathbf{n}_{\mathbf{S}}$  — нормаль к поверхности в точке столкновения со стенкой.

Плотность нейтронов зависит от высоты *z*, определяемой по отношению к самой низкой координате камеры хранения:

$$\varrho(z,v) = c\,\delta(v_0^2 - 2gz - v^2),\tag{4}$$

где c — константа нормировки;  $v_0$  — скорость нейтрона на дне камеры; v — скорость нейтрона на высоте z;  $\varrho(0, v) = c \,\delta(v_0^2 - v^2)$  — плотность нейтронов на дне камеры;  $g = 9,80665 \text{ м/c}^2$  — гравитационное ускорение.

Для нашей геометрии вертикального цилиндра интеграл в левой части уравнения (3) (эффективный объем) преобразуется в

$$c(\pi r)^2 \int_{0}^{v_0^2/2g} (v_0^2 - 2gz)^{1/2} dz = c \frac{2(\pi r)^2 v_0^3}{3g},$$
(5)

где *r* — радиус цилиндра.

Правая часть определяется потерями в цилиндрической стенке:

$$c\pi^2 r \int_{0}^{v_0^2/2g} (v_0^2 - 2gz) \langle \mu(v) \rangle \, dz,$$
 (6)

а также потерями на дне камеры:  $c(\pi r)^2 \langle \mu(v_0) \rangle v_0^2/2$ .

Таким образом, величины темпа потерь нейтронов при соударении с боковой поверхностью камеры и дном равны соответственно

$$\frac{3g}{2rv_0^3} \int_{0}^{v_0^2/2g} (v_0^2 - 2gz) \langle \mu(v) \rangle \, dz \quad \mathbf{H} \quad \frac{3g \langle \mu(v_0) \rangle}{4v_0}. \tag{7}$$

#### 446 Дюзинг К. и др.

Таким же образом можно вычислить потери УХН или вероятность прохождения УХН на любом участке поверхности камеры, при этом интегрирование в уравнении (7) производится в необходимых пределах по координатам. Например, темп утечки нейтронов через возможную щель в дне камеры (в частности, в несовершенном клапане впускавыпуска нейтронов) имеет вид  $(3g\langle \mu(v_0)\rangle s)/(4v_0S)$ , где s и S — площади щели и дна камеры соответственно. Для спектральных распределений УХН  $\rho(v_0)$  производится интегрирование уравнения (7) по этим распределениям.

Как показали экспериментальные кривые хранения УХН в камере, покрытой фторполимером, наблюдалось (по скорости счета боковых счетчиков) проникновение УХН сквозь покрытие. С другой стороны, наблюдаемое в эксперименте хранение УХН в титановой камере без специального предварительного покрытия фторполимером можно объяснить наличием окисной пленки, и, возможно, тонкой пленки фторполимера. Для интерпретации хранения УХН в камере с многослойным покрытием необходимо рассчитывать прохождение УХН сквозь такие многослойные пленки. В этом случае использовался формализм [32] рекуррентных формул, содержащих аналитические решения для амплитуд проходящих и отраженных волн для любой последовательности комплексных потенциалов.

Амплитуды прохождения и отражения нейтронных волн от *n*-й границы в последовательности потенциалов имеют вид

$$T_n = \frac{t_n^+ e^{i\phi_{n-1}} T_{n-1}}{1 - r_n^- R_{n-1} e^{2i\phi_{n-1}}}$$
(8)

И

$$R_n = \frac{r_n^+ + (t_n^+ t_n^- - r_n^+ r_n^-) e^{2i\phi_{n-1}} R_{n-1}}{1 - r_n^- R_{n-1} e^{2i\phi_{n-1}}}$$
(9)

соответственно, где

$$t_n^+ = \frac{2k_n}{k_n + k_{n-1}}, \quad t_n^- = \frac{2k_{n-1}}{k_n + k_{n-1}}, \quad r_n^+ = -r_n^- = \frac{k_n - k_{n-1}}{k_n + k_{n-1}}, \quad k_i = \sqrt{k^2 - u_i}.$$
 (10)

Здесь k — волновой вектор нейтрона в вакууме;  $u_i = 2mU_i/\hbar^2$ ,  $\phi_i = k_i l_i$ , и  $l_i$  — толщина *i*-го слоя в последовательности потенциалов. Вероятности прохождения и отражения от последовательности n потенциалов равны соответственно  $w_t = |T_n|^2$  и  $w_r = |R_n|^2$ .

Усредненные по углам коэффициенты отражения и прохождения  $\langle \mu(v) \rangle$  для таких слоистых покрытий вычислялись для изотропных угловых распределений нейтронов, падающих на такие поверхности.

## 5. ЭКСПЕРИМЕНТЫ С ПРИМЕНЕНИЕМ БОРНОГО ПОГЛОТИТЕЛЯ ДЛЯ ФОРМИРОВАНИЯ ИСХОДНОГО СПЕКТРА УХН

Варьирование начального спектра УХН осуществлялось с помощью борного поглотителя (5) на рис. 2 (<sup>10</sup>В с обогащением 94 %). При наполнении камеры и после определенной выдержки нейтроны, достигающие в гравитационном поле поверхности поглотителя, с большой вероятностью поглощаются, и в камере должны сохраниться нейтроны с верхней границей спектра, определяемой высотой расположения поглотителя:



Рис. 5. Рассчитанные коэффициенты отражения нейтронов при изотропном падении на поверхность некоторых поглотителей: I — полиэтилен; 2 — титан; 3, 4 —  $^{10}$ В и  $^{10}$ В<sub>0,94</sub> $^{11}$ В<sub>0,06</sub>; 5 — гадолиний



Рис. 6. Измеренные кривые хранения УХН в камере, покрытой фторполимером, при расположении борного поглотителя на разной высоте: *1* — 31 см; 2 — 50 см; *3* — 75 см; *4* — 100 см. Аппроксимация кривыми проведена в гипотезе двух экспонент

 $E_b$  (нэВ) = 1,025 $h_{\rm abs}$  см. Вероятность отражения R нейтрона от поверхности с комплексным потенциалом U:

$$R = \left| \frac{k_{0,\perp} - k_{\perp}}{k_{0,\perp} + k_{\perp}} \right|^2.$$
(11)

Здесь  $k_{0,\perp}$  — нормальная к поверхности компонента нейтронного импульса в вакууме;  $k_{\perp} = (k_{0,\perp}^2 - 2mU/\hbar^2)^{1/2}$  — нормальная к поверхности компонента нейтронного импульса в среде;  $U = (\hbar^2/2m) \sum_i 4\pi N_i b_i$ ,  $N_i$  — атомная плотность,  $b_i$  — комплексная когерентная длина рассеяния нейтрона в среде. Рассчитанный коэффициент отражения УХН (при изотропном падении) поверхностью <sup>10</sup>В вместе с другими поглотителями: титаном, полиэтиленом и естественным гадолинием, показан на рис. 5. Комплексный потенциал, используемый в расчете отражения от поверхности обогащенного бора, рассчитанный по уравнению (2), имеет вид Re U = 6,624 нэВ, Im U = -31,38 нэВ. Комплексный потенциал гадолиния: Re U = 74,9 нэВ, Im U = -108,8 нэВ. Коэффициенты поглощения <sup>10</sup>В чистого и <sup>10</sup>В<sub>0,94</sub><sup>11</sup>В<sub>0,06</sub> — обогащенного до 94 % практически не отличаются.

Экспериментальные данные по хранению нейтронов в камере, покрытой фторполимером, при различных высотах расположения борного поглотителя показаны на рис. 6. Также показаны кривые, аппроксимирующие эти данные в модели двух экспонент временного спада. Быстрая часть временного спада соответствует поглощению нейтронов с энергией  $E > mgh_{\rm abs}$ , превышающей необходимую для достижения поглотителя в поле тяжести, а медленная отражает хранение нейтронов с энергией ниже этой величины. Качественно кривые выглядят естественно: с уменьшением высоты поглотителя (т. е. с уменьшением энергии хранящихся нейтронов) более быстрая компонента нейтронного спектра поглощается быстрее, а время хранения медленной (не поглощенной бором) компоненты спектра увеличивается, поскольку потери УХН меньше для нейтронов с меньшей энергией.



Рис. 7. Точки — экстраполированые к нулевому моменту числа хранящихся УХН при разных высотах борного поглотителя (нормированы к единице при высоте 100 см). Кривые — рассчитанные числа хранящихся УХН в зависимости от высоты борного поглотителя (также нормированы к единице при высоте 100 см) при разных предположениях о форме начального спектра УХН:  $I - n(E) \sim E^{1/2}$ ;  $2 - n(E) \sim E$ ;  $3 - n(E) \sim E^{3/2}$ ;  $4 - n(E) \sim E^{1,2}$ 

Интерес представляют количества нейтронов, не поглощенных борным поглотителем, при разных высотах поглотителя, экстраполированные к начальному моменту. Эти числа говорят о форме начального спектра плотности нейтронов в камере хранения:  $N = \int \varrho(E) dE$  в пределах от нуля до энергии, определяемой положением поглотителя. На рис. 7 представлены эти данные вместе с рассчитанными в разных предположениях о форме этого исходного спектра плотности нейтронов:  $n(E) \sim E^d$  при d = 1/2 (максвелловский спектр плотности), d = 1 и d = 3/2. Видно, что эксперимент соответствует спектру, относительно обедненному при малых энергиях нейтронов по сравнению с максвелловским спектром плотности  $n(E) \sim E^{1/2}$ . Наилучшее согласие с экспериментом достигается для спектра  $n(E) = 2,2E^{1,2}/E_{\rm max}^{2,2}$  (спектр нормирован на единицу). Все последующие расчеты хранения УХН проводились для этого спектра нейтронов.

# 6. ХРАНЕНИЕ УХН В ТИТАНОВОЙ КАМЕРЕ БЕЗ СПЕЦИАЛЬНОГО ПОКРЫТИЯ ФТОРПОЛИМЕРОМ

В титановой камере УХН не могут храниться из-за низкого коэффициента отражения нейтронов от поверхности с отрицательным знаком потенциала взаимодействия нейтронов с титаном:  $U_{\rm Ti} = -49,7$  нэВ (см. рис. 5). Однако из-за наличия загрязнений, окисной пленки с положительным потенциалом ( $U_{\rm TiO_2} = 68,9$  нэВ), или тонкой пленки недостаточно удаленного фторполимера возможно заметное отражение нейтронов. Контроль временной зависимости количества хранящихся в титановой камере нейтронов проводился по скорости счета пяти счетчиков на боковой поверхности камеры сразу после 40 с заполнения камеры нейтронами и закрывания камеры. На рис. 8 показана скорость счета бокового счетчика нейтронов, расположенного на высоте 4 см от дна камеры. Видно, что УХН хранятся в титановой камере с временной константой



Рис. 8. Точки — измеренная кривая хранения УХН в титановой камере. Кривые рассчитаны в разных предположениях о толщине пленки двуокиси титана TiO<sub>2</sub>

спада плотности нейтронов  $\sim 4$  с. Если пытаться объяснить измеренное время хранения в титановой камере наличием только окисной пленки, то моделирование временной эволюции числа нейтронов в титановой камере, покрытой окисной пленкой, соответствует экспериментальным данным, если толщина пленки двуокиси титана  $\rm TiO_2$  равна  $\sim 500$  Å (см. рис. 8).

Для интерпретации кривых хранения УХН и скоростей счета боковых счетчиков расчеты эволюции числа оставшихся в камере УХН (временных кривых хранения УХН) проводились в предположении слоистой структуры стенки камеры, включающей слои фторполимера, двуокиси титана  $TiO_2$ , бора <sup>10</sup>В (в случае расчета скорости счета бокового счетчика с борным конвертером нейтронов в заряженные частицы) и титана. Формы потенциалов стенок камеры хранения, используемых в расчетах отражения УХН, показаны на рис. 9. При расчете хранения УХН в камере, покрытой фторполимером, использовалась последовательность из трех потенциалов: 1 — фторполимер, U = 106 нэВ; 2 — двуокись титана  $TiO_2$ , Re U = 68.9 нэВ. Im  $U = -1.4 \cdot 10^{-2}$  нэВ: 3 титан: ReU=-49,7нэВ, Im $U=2,5\cdot 10^{-2}$ нэВ (на рис. 9 показаны слева). Справа показана после-



Рис. 9. Формы потенциалов, используемых в расчетах отражения УХН. Слева — при хранении УХН в камере, покрытой фторполимером: I — фторполимер, U = 105 нэВ; 2 — двуокись титана TiO<sub>2</sub>, Re U = 68,9 нэВ, Im  $U = -1,4 \cdot 10^{-2}$  нэВ; 3 — титан, Re U = -49,7 нэВ, Im  $U = 2,5 \cdot 10^{-2}$  нэВ. Справа — при расчете скорости счета борного счетчика на боковой поверхности камеры хранения: I — фторполимер; 2 —  ${}^{10}$ В0,94 ${}^{11}$ В0,06, Re U = 6,624 нэВ, Im U = -31,4 нэВ. Нейтроны на этих схемах падают справа. Толщины показаны не в масштабе

довательность потенциалов при расчете скоростей счета борных счетчиков на боковой поверхности камеры хранения: *1* — фторполимер; *2* — слой обогащенного бора. Нейтроны на этих схемах падают справа, толщины показаны не в масштабе.

## 7. ХРАНЕНИЕ УХН В КАМЕРЕ, ПОКРЫТОЙ ФТОРПОЛИМЕРОМ

Интерпретация данных хранения УХН в титановой камере, покрытой фторполимером, не является однозначной, так как разные комбинации предполагаемых толщин пленок двуокиси титана и фторполимера могут удовлетворить экспериментальной кривой хранения УХН. Для получения однозначного вывода о толщинах всех пленок привлекаются данные по скорости счета боковых счетчиков. При толщине пленки двуокиси титана TiO<sub>2</sub>, равной ~ 500 Å, полученной из хранения УХН в титановой камере, моделирование хранения нейтронов в камере, покрытой фторполимером, требует для согласования с экспериментальной кривой хранения (см. ниже рис. 11) толщины полимерного покрытия всего ~ 365 Å. Однако при этом рассчитанная скорость счета боковых счетчиков с активным слоем <sup>10</sup>В, поверхность которых также должна быть покрыта таким слоем фторполимера, превышает измеренную (рис. 10) более, чем на порядок. Для согласования этих противоречивых результатов были опробованы разные варианты гипотетических комбинаций толщин пленок TiO<sub>2</sub> и остаточного фторполимера при измерениях хранения УХН в титановой ловушке и толщины пленки фторполимера, когда она специально наносилась для достижения хранения УХН.

Следует отметить, что воспроизводимость кривых хранения УХН в камере, покрытой фторполимером методом разбрызгивания, оказалась невысокой: разброс полученных времен хранения при разных осаждениях полимера превышал 50%. Как уже отмечалось, наблюдалось проникновение УХН сквозь полимерное покрытие. Рис. 10 показывает измеренную скорость счета бокового борного счетчика в функции времени при измерении хранения УХН в камере, покрытой фторполимером. Аппроксимация в модели одной экспоненты (показана линией) дает скорость счета в функции времени  $N(t) = (0.024 \pm 0.11) + (0.80 \pm 0.23) \exp(-t/(157 \pm 98))$ . Такая скорость счета описывается моделью, если толщина полимерного покрытия составляет 650 Å. На рис. 11 показан



Рис. 10. Измеренная скорость счета бокового борного счетчика в функции времени при измерении хранения УХН в камере, покрытой фторполимером. Кривая — аппроксимация в модели одной экспоненты



Рис. 11. Точки — измерение хранения УХН в камере, покрытой фторполимером. Кривые — результаты моделирования хранения в предположении толщины пленки фторполимера 650 Å и в разных предположениях о толщине пленки двуокиси титана TiO<sub>2</sub>: 100 и 120 Å

точками пример экспериментальной кривой хранения — числа УХН, оставшихся в камере, в зависимости от времени выдержки. Если интерпретировать полученный результат, не принимая во внимание наблюдаемое прохождение хранящихся УХН сквозь полимерное покрытие, а трактовать его в терминах уравнений (1), (2) в разных предположениях о величине коэффициента потерь  $\eta$  для фторполимера с  $E_b = 106$  нэВ, то наилучшее согласие имеет место при  $\eta \sim 2.7 \cdot 10^{-4}$ , что на два порядка хуже ожидаемого значения  $\eta \sim 2 \cdot 10^{-6}$ . На рис. 11 показаны также результаты моделирования хранения УХН в предположении толщины пленки фторполимера 650 Å и в разных предположениях о толщине пленки двуокиси титана TiO<sub>2</sub>: 100 и 120 Å. Наилучшее согласие достигается в предположении, что эта толщина находится в пределах 110–120 Å. Согласовать все экспериментальные данные удается лишь в предположении, что толщина Ti-покрытия составляет 4000–5000 Å, толщина окисной пленки TiO<sub>2</sub> равна 110 Å, толщина фторполимерного покрытия — 650 Å.

#### 8. ВЫВОДЫ

Проведенные эксперименты по хранению УХН в камере, покрытой низкомолекулярным фторполимером в твердом состоянии при низкой температуре, показали следующее.

• Процедура нанесения покрытия методом разбрызгивания не дает удовлетворительно воспроизводимых результатов.

• Наблюдается проникновение УХН сквозь полимерное покрытие, что можно объяснить недостаточной толщиной покрытия, которая, скорее всего, является следствием стекания полимера из-за низкой вязкости в жидком состоянии после расплавления перед последующим замораживанием.

• Разработаны алгоритмы расчета хранения УХН в камере, стенка которой описывается слоистым комплексным потенциалом, и проведено моделирование поведения нейтронов в различных экспериментальных ситуациях, позволившее согласовать результаты разных измерений: при хранении УХН в титановой камере, хранении в камере, покрытой фторполимером, вариации спектра с помощью борного поглотителя, скорости счета борных счетчиков УХН на боковой поверхности камеры хранения.

• Созданная для исследования хранения УХН в низкотемпературных камерах установка имеет хороший потенциал для продолжения исследований хранения УХН в камерах, покрытых фторполимерами при низких температурах.

Авторы признательны персоналу реактора Института Лауэ–Ланжевена за обеспечение работы реактора и помощь.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Dübbers D., Schmidt M. C. // Rev. Mod. Phys. 2011. V. 83. P. 1111.
- 2. Wietfeldt F. E., Greene G. L. // Ibid. P. 1173.
- Зельдович Я. Б. // ЖЭТФ. 1952. Т. 36. С. 1952; Shapiro F. L. // Proc. of the Intern. Conf. on Nuclear Structure with Neutrons, Budapest, 1972 / Ed. by J. Ero and J. Szucs. New York: Plenum, 1972. P. 259;

452 Дюзинг К. и др.

Steyerl A. // Neutron Physics. Springer Tracts in Mod. Phys. V. 80. Berlin; Heidelberg; New York: Springer, 1977. P. 57;

Golub R., Pendlebury J. M. // Rep. Prog. Phys. 1979. V.42. P.439;

Игнатович В. К. Физика ультрахолодных нейтронов. М.: Наука, 1986. (The Physics of Ultracold Neutrons. Oxford: Clarendon, 1990);

Golub R., Richardson D. J., Lamoreaux S. Ultracold Neutrons. Bristol: Adam Hilger, 1991;

Pendlebury J. M. // Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 1993. V. 43. P. 687.

- 4. Byrne J. et al. // Europhys. Lett. 1996. V. 33. P. 187.
- 5. Nico J. S. et al. // Phys. Rev. C. 2005. V.71. P. 05550.
- 6. Yue A. T. et al. // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 111. P. 222501.
- 7. Pichlmaier A. et al. // Nucl. Instr. Meth. A. 2000. V. 440. P. 517.
- 8. Pichlmaier A. et al. // Phys. Lett. B. 2010. V. 693. P. 221.
- Serebrov A. et al. // Phys. Lett. B. 2005. V. 605. P. 7; Serebrov A. et al. // Phys. Rev. C. 2008. V. 78. P. 035505.
- Arzumanov S. et al. // Phys. Lett. B. 2000. V.483. P.15; Arzumanov S. et al. // Nucl. Instr. Meth. A. 2000. V.440. P.511.
- 11. Арзуманов С. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2012. Т. 95. С. 248 (JETP Lett. 2012. V. 95. P. 224).
- 12. Arzumanov S. et al. // Phys. Lett. B. 2015. V.745. P.79.
- 13. Ezhov V. F. // Intern. Conf. on Ultracold and Cold Neutrons Physics and Sources, St. Petersburg, 2009;

Ezhov V. F. et al. arxiv:1412.7434[nucl-ex].

- 14. Morris C. L. et al. LA-UR-16-27352; arXive:1610.04560 [nucl-ex].
- 15. Pattie R. W., Jr. et al. arXive:1707.01817 [nucl-ex].
- 16. Серебров А. П. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2017. Т. 106. С. 599.
- 17. Steyerl A., Malik S. S., Desai A. M., Kaufman C. // Phys. Rev. C. 2010. V.81. P. 055505.
- Steyerl A., Pendlebury J. M., Kaufman C., Malik S. S., Desai A. M. // Phys. Rev. C. 2012. V.85. P.065503.
- Berezhiani Z., Bento L. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 96. P. 081801; Berezhiani Z. // Eur. Phys. J. C. 2009. V. 64. P. 421; Berezhiani Z. arXiv:1602.08588[astro-ph.]; Berezhiani Z. // Intern. Workshop "Probing Fundamental Symmetries and Interactions with UCN", JGU Mainz, Germany, April 11–15, 2016.
- Sarazzin M. et al. // Phys. Lett. B. 2012. V. 712. P. 213; Sarazzin M. et al. // Phys. Lett. B. 2016. V. 758. P. 14.
- Bates J. C. // Phys. Lett. 1982. V. 88A. P. 427;
   Bates J. C. // Nucl. Instr. Meth. A. 1983. V. 216. P. 535.
- 22. Покотиловский Ю. Н. // ЖЭТФ. 2003. Т. 123. С. 203 (JETP. 2003. V. 96. P. 172).
- 23. www.solwaysolexis.com
- 24. Pokotilovski Yu. N. // Phys. Lett. A. 1999. V. 255. P. 173.
- 25. Lamoreaux S. K., Golub R. // Phys. Rev. C. 2002. V. 66. P. 044309.
- 26. Pokotilovski Yu. N. // Nucl. Instr. Meth. A. 1999. V. 425. P. 320.

- Sung K., Lagow R. J. // J. Am. Chem. Soc. 1995. V.117. P.4276; Sung K., Lagow R. J. // Synth. Commun. 1996. V.26. P.375.
- 28. Косвинцев Ю. Ю., Морозов В. И., Терехов Г. И. // Письма в ЖЭТФ. 1982. Т. 36. С. 346.
- 29. Pokotilovski Yu. N. // Yad. Fiz. 2010. V. 73. P. 755.
- 30. www.ill.fr/YellowBook/PF2/
- 31. Игнатович В. К., Терехов Г. И. Сообщ. ОИЯИ Р4-9567. Дубна, 1976.
- 32. Игнатович В. К. Препринт ОИЯИ Р4-10778. Дубна, 1977; Препринт ОИЯИ Р4-11135. Дубна, 1978.

Получено 8 января 2018 г.