

УДК 539.1

ВЛИЯНИЕ ЭФФЕКТА УВЕЛИЧЕНИЯ ПЛОТНОСТИ ПОТОКА ИОНОВ НА ВЫХОД РЕАКЦИИ DD ПРИ КАНАЛИРОВАНИИ ИОНОВ D^+ В ДЕЙТЕРИРОВАННОМ ПАЛЛАДИИ

© 2020 г. О. Д. Далькаров^а, М. А. Негодаев^а, А. С. Русецкий^а,
А. П. Чубенко^а, Ю. Л. Пивоваров^б, Т. А. Тухфатулин^б. *

^аФизический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, 119991 Россия

^бНациональный исследовательский Томский политехнический университет, Томск, 634050 Россия

*e-mail: tta@tpu.ru

Поступила в редакцию 16.07.2019 г.

После доработки 27.08.2019 г.

Принята к публикации 27.08.2019 г.

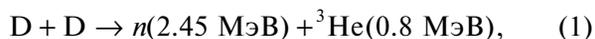
Исследовано взаимодействие пучка ионов дейтерия (D^+) с дейтерированными мишенями Pd и Ti с использованием ускорителя ионов ГЕЛИС (ФИАН). Выход нейтронов определен по реакции DD в дейтерированной мишени Pd при облучении ее поверхности пучком ионов D^+ с энергией 20 кэВ. Измерения потока нейтронов в направлении пучка ионов D^+ проводили в зависимости от угла поворота мишени β относительно оси пучка с использованием многоканального детектора на основе счетчиков ^3He . Наблюдалась значительная анизотропия (эффект ориентации) выхода нейтронов. Он был в два раза выше при $\beta = 0^\circ$ по сравнению с выходом при $\beta = \pm 30^\circ$. Эффект ориентации может быть связан с каналированием и так называемым эффектом увеличения плотности потока ионов. Он был исследован с помощью компьютерного моделирования с использованием кода ВСМ-2.0. Повышенная плотность потока ионов D^+ между плоскостями (200) кристалла Pd (где расположен имплантированный D) при нулевом угле падения относительно этих плоскостей позволила качественно объяснить наблюдаемый эффект ориентации. В гомогенной мишени дейтерированного титана такой эффект не наблюдался.

Ключевые слова: выход DD-реакции, взаимодействие нейтронов с веществом, ускоритель ионов, детектор нейтронов, плоскостное каналирование, каналирование ионов в кристаллах.

DOI: 10.31857/S1028096020030073

ВВЕДЕНИЕ

Взаимодействие пучка ионов дейтерия (D^+) с обогащенными D неподвижными мишенями исследовано в [1–5] с использованием ускорительной установки ГЕЛИС (ФИАН). В [5] авторы исследовали выход нейтронов в реакции:



с использованием текстурированной мишени из синтетического алмаза, полученного методом химического осаждения из газовой фазы [6], и пучка D^+ с энергией 20 кэВ от ускорителя ГЕЛИС, который обеспечивает пучок с небольшой угловой и энергетической расходимостью. Авторы [5] предположили, что наблюдаемое увеличение выхода нейтронов связано как с эффектами экранирования, так и с каналированием.

Ориентационный эффект увеличения коэффициента усиления DD-реакции в синтетическом алмазе был исследован методом компьютерного моделирования [7]. Было получено, что

вследствие эффекта увеличения плотности потока ионов, обусловленного каналированием, в 2.2 раза возрастает относительный коэффициент усиления для параллельного пучка и до 1.2 раза для пучка D^+ с угловой расходимостью, равной трем критическим углам каналирования. Получено качественное согласие с экспериментом [5]. Результаты [5] были подтверждены в дальнейших экспериментах на ускорительной установке ГЕЛИС. При меньшем шаге изменения угла β относительный выход нейтронов при угле падения пучка на мишень $\beta = 0^\circ$ в 5.5 раз больше, чем при $\beta = 30^\circ$ (рис. 1). В продолжение этих исследований мишень из синтетического алмаза была заменена мишенью из дейтерированного Pd, что позволило обеспечить другие условия экранирования и каналирования.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Схемы расположения детектора и мишени на установке ГЕЛИС показаны на рис. 2. Нейтроны регистрировали с помощью детектора на основе

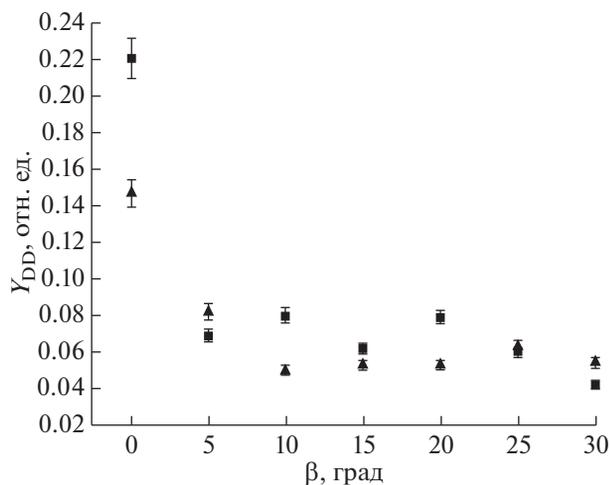


Рис. 1. Выход нейтронов, полученный с помощью образца синтетического алмаза, в зависимости от угла β между пучком ионов D^+ и нормалью к плоскости мишени, измеренный в продольном (■) и поперечном (▲) направлениях относительно пучка ионов. Энергия пучка составляет $E_D = 21.4$ кэВ, сила тока 200 мкА.

счетчиков ^3He . Эффективность детектирования нейтронов для первой и второй групп счетчиков (каждая группа содержала 12 счетчиков) была определена с использованием источника нейтронов ^{252}Cf , помещенного на место мишени. Относительный выход DD-реакции (1) определяли, как $Y_{DD} = n_n / (SI_D)$, где n_n — продольный или поперечный поток нейтронов, S — облучаемая площадь мишени и I_D — ток пучка ионов D^+ .

Для изучения влияния ориентации на выход нейтронов была использована мишень из дейтерированной палладиевой фольги, для сравнения — мишень из дейтерированного титана. Процедура приготовления образца дейтерированного палладия приведена в [8]. Образцы $\text{Pd}/\text{PdO}:D_x$ размером 2.5×1 см были получены термическим окислением холоднокатаной фольги Pd (чистота 99.95%, толщина 50 мкм). В результате на поверх-

ности фольги образуется оксидная пленка PdO толщиной ~ 50 нм. Затем образцы насыщали дейтерием с помощью электролиза в растворе LiOD концентрацией 0.3 М в D_2O с анодом из Pt при плотности тока $20 \text{ мА}/\text{см}^2$ и температуре ~ 290 К в ячейке с разделенными катодным и анодным пространствами. После двадцатиминутного насыщения дейтерием до $x = D/\text{Pd} \sim 0.73$ образцы промывали в тяжелой воде и охлаждали жидким азотом до 77 К (охлаждение образца до температуры жидкого азота необходимо для замедления выхода дейтерия). Затем мишень была установлена в держатель и помещена в экспериментальную вакуумную камеру установки ГЕЛИС для дальнейшего изучения.

Образцы $\text{Ti}/\text{TiO}_2:D_x$ размером 3×1 см были изготовлены из титановой фольги толщиной 300 мкм со слоем TiO_2 толщиной 100–150 нм путем электролитического насыщения дейтерием в растворе D_2SO_4 концентрацией 0.3 М в D_2O при плотности тока $30 \text{ мА}/\text{см}^2$ в ячейке с разделенными катодным и анодным пространствами. Образцы использовали в качестве катода (анод был изготовлен из Pt). Последующее взвешивание показало, что в среднем 0.5 мг дейтерия было введено в каждый образец в течение времени электролиза 48 ч. Это обеспечивало среднюю степень насыщения $x = D/\text{Ti} \sim 0.1$ на глубине до 1 мкм. Образцы $\text{Ti}/\text{TiO}_2:D_x$ остаются практически стабильными при температуре 300 К, поэтому они могут быть насыщены дейтерием задолго до облучения.

После насыщения мишени помещали в держатель, охлаждаемый водой, и облучали пучком ионов D^+ . Часть дейтерия выходила из образца, и через некоторое время устанавливалась равновесная концентрация в поверхностном слое, что было видно по равномерному счету нейтронного детектора. После этого снимали зависимость выхода нейтронов от угла поворота мишени. Измерения начинали с угла $\beta = 0^\circ$ и заканчивали этим же положением, чтобы проверить стабильность результата. Выход нейтронов при каждом

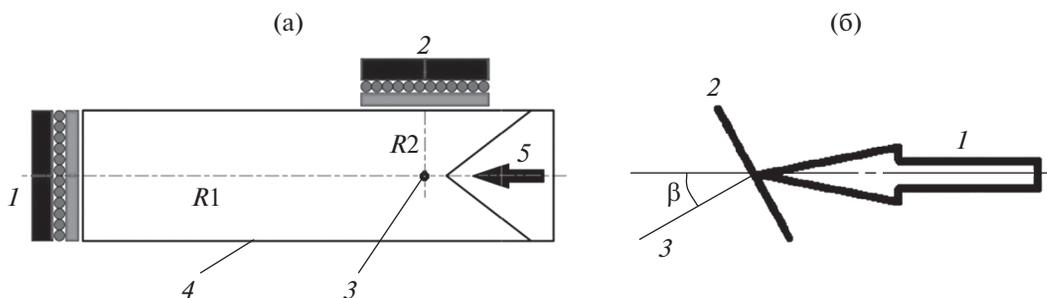


Рис. 2. Схема расположения: а — детектора (1, 2 — первая и вторая группы счетчиков ^3He , $R_1 = 85$, $R_2 = 38$ см, 3 — мишень, 4 — камера ГЕЛИС, 5 — направление ионного пучка); б — мишени (1 — направление пучка D^+ , 2 — мишень, 3 — нормаль к поверхности мишени, β — угол между направлением луча и нормалью к плоскости мишени).

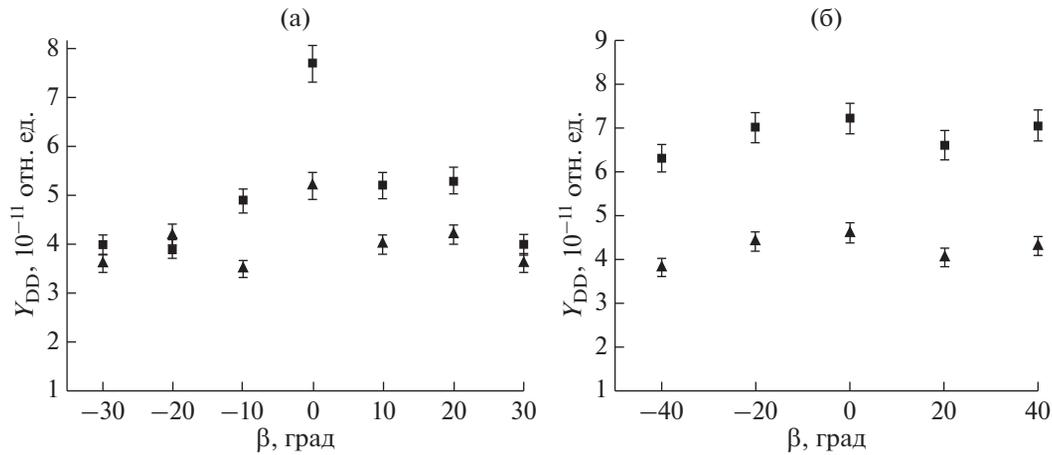


Рис. 3. Зависимость выхода нейтронов из образцов Pd/PdO:D_x (а) и Ti/TiO₂:D_x (б) от угла β между направлением пучка дейтронов и нормалью к плоскости мишени: ■ – вдоль пучка; ▲ – поперек пучка. Энергия пучка $E_D = 20$ кэВ, сила тока 40 мкА.

положении мишени измеряли в течение 10 мин. Облучение мишеней проводилось при небольшой плотности тока (около 150 мкА см^{-2}) во избежание изменения концентрации дейтерия в мишени и искажения результатов.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Зависимость выхода нейтронов из образцов Pd/PdO:D_x и Ti/TiO₂:D_x от угла β между пучком дейтронов и нормалью к плоскости мишени показана на рис. 3. Значительная анизотропия выхода нейтронов наблюдается для мишени Pd/PdO:D_x: выход нейтронов был выше в два раза при $\beta = 0^\circ$ по сравнению с выходом при $\beta = \pm 30^\circ$. В случае образцов дейтерированного титана этот эффект не наблюдается. На поверхности образцов дейтерированного палладия были обнаружены поры размером 100–1000 нм, а на поверхности дейтерированного титана пористая структура отсутствует [8]. Наличие пор на поверхности дейтерированного палладия может привести к увеличению эффективного пробега ионов дейтерия, нормально падающих на мишень, и, следовательно, к увеличению выхода нейтронов.

МОДЕЛИРОВАНИЕ ТРАЕКТОРИЙ ИОНОВ D⁺ ПРИ КАНАЛИРОВАНИИ

Для объяснения анизотропии выхода нейтронов было проведено моделирование траекторий ионов D⁺ при плоскостном каналировании в кристалле Pd. Кинетическая энергия ионов равна 20 кэВ. Параметр $\frac{v}{c} = 0.0046 \ll 1$ (v – скорость иона, c – скорость света). Уравнение движения ионов будет нерелятивистским. Движение опре-

деляется периодическим плоскостным потенциалом кристаллической решетки $U(x)$, поэтому

$$M \frac{d^2x}{dt^2} = F_x = -\frac{\partial U(x)}{\partial x}, \quad (2)$$

$$M \frac{d^2y}{dt^2} = M \frac{d^2z}{dt^2} = 0 \Rightarrow v_y = \text{const}, \quad v_z = \text{const}.$$

Здесь M – масса иона, F_x – сила, действующая на ион в периодическом поле кристалла.

Пусть ось OZ параллельна плоскостям каналирования, а вектор скорости иона при влете в кристалл лежит в плоскости XOZ , тогда $v_y(t=0) = 0$. В этом случае ион D⁺ движется с постоянной скоростью $v_z = \text{const}$ вдоль плоскостей каналирования (параллельно оси OZ) и колеблется в направлении оси OX . Начальными условиями для системы уравнений (2) являются точка влета $x(t=0) = x_0$ и начальная скорость $v_x(t=0) = v \sin \theta$ (θ – угол падения, т.е. угол между вектором начальной скорости и осью OZ).

Численное решение уравнений движения (2) было выполнено с использованием компьютерного кода ВСМ–2.0 [9, 10], разработанного авторами. При моделировании траекторий учитывали угловую расходимость пучка ионов. Для каждой точки влета x_0 было выбрано несколько углов падения θ . Углы выбирали с помощью датчика случайных чисел, имеющего нормальное распределение, с заданной дисперсией $\Delta\theta$. Начальные точки влета равномерно распределялись в пределах одного периода изменения потенциала $U(x)$. Если угол падения иона на кристалл меньше критического угла каналирования θ_c , то ион совершает периодическое (финитное) движение между плоскостями каналирования. В этом случае плотность потока ионов внутри кристалла периодиче-

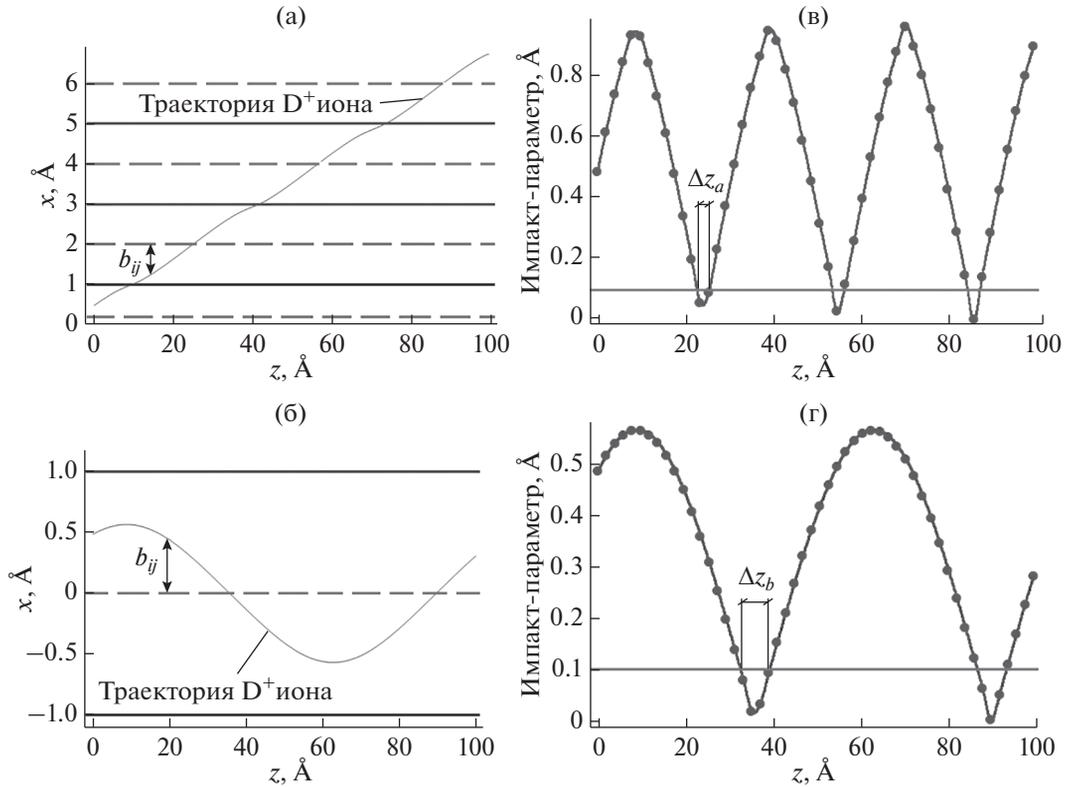


Рис. 4. Типичные траектории ионов D^+ с энергией 20 кэВ при каналировании вдоль плоскостей (200) в кристалле Pd (а, б), импакт-параметр взаимодействия каналированных ионов с плоскостью, сформированной имплантированными в кристалл атомами дейтерия (в, г): а, в – надбарьерное движение $\theta > \theta_c$, $\theta = 4^\circ$; б, г – подбарьерное движение $\theta < \theta_c$, $\theta = 1^\circ$. Сплошными линиями обозначены плоскости (200) кристалла Pd, пунктирными линиями – плоскости, сформированные имплантированными в кристалл атомами дейтерия. Точками показано положение ионов D^+ напротив имплантированных атомов.

ски достигает максимума – это так называемый эффект увеличения плотности потока ионов [11]. Если $\theta > \theta_c$, то движение иона становится непериодическим (инфинитным). Критический угол каналирования ионов определяется формулой для ионов:

$$\theta_c = \sqrt{\frac{2U_0 Z_i}{Mv^2}}, \quad (3)$$

где Z_i – зарядовое число иона, U_0 – глубина потенциальной ямы.

Образцы Pd, используемые в эксперименте, были получены термическим окислением холоднокатаной фольги. При холодной прокатке металлов, имеющих объемно-центрированную кубическую решетку, большинство зерен ориентируется так, что в плоскости листа устанавливается грань куба (100) [12], а для металлов с гранецентрированной решеткой – диагональная плоскость (110). Критический угол в случае каналирования вдоль плоскостей (200) равен $\theta_c = 3.58^\circ$, при каналировании вдоль плоскостей (110) $\theta_c = 4.48^\circ$

за счет увеличения глубины потенциальной ямы U_0 . Таким образом, существенных различий результатов моделирования, связанных с выбором плоскости каналирования, быть не должно.

Было проведено моделирование траекторий ионов D^+ с энергией 20 кэВ при каналировании вдоль плоскостей (200) в кристалле палладия. Для учета факта, что не все зерна поликристаллической фольги ориентированы одинаково, была использована процедура моделирования угловой расходимости падающего пучка дейтронов. Результаты расчета представлены на рис. 4. На рис. 4а, 4б показаны участки траектории движения ионов при каналировании для углов падения 4° ($\theta > \theta_c$) и 1° ($\theta < \theta_c$). Сплошными линиями обозначены плоскости (200) кристалла Pd, пунктирными линиями – плоскости, сформированные имплантированными в кристалл атомами дейтерия (предполагаем, что все имплантированные атомы дейтерия расположены идеально между плоскостями кристаллической решетки Pd). На рис. 4в, 4г показаны импакт-параметры взаимодействия каналированных ионов с плоско-

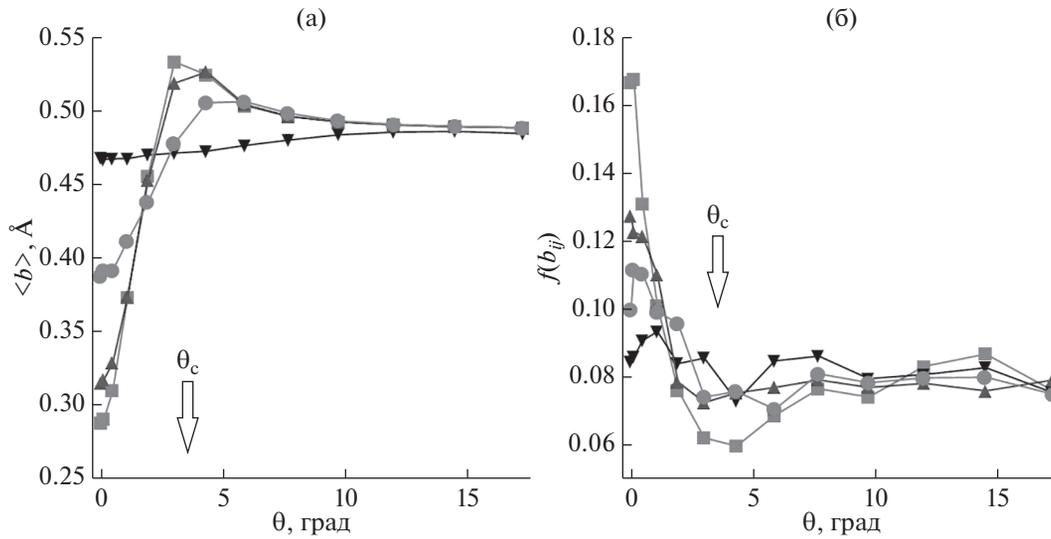


Рис. 5. Результаты моделирования каналирования ионов D^+ с энергией 20 кэВ вдоль плоскостей (200) в кристалле Pd – зависимость от угла падения θ : а – усредненного по всем траекториям импакт-параметра $\langle b \rangle$; б – доли ионов D^+ $f(b_{ij})$, которые проходят на расстоянии меньше $2R_D$ вблизи имплантированных в кристалл атомов дейтерия, при различной угловой расходимости падающего ионного пучка $\Delta\theta$: \blacksquare – $\theta_c/10$, \blacktriangle – $\theta_c/5$, \bullet – $\theta_c/2$, \blacktriangledown – $2\theta_c$. Критический угол каналирования $\theta_c = 3.58^\circ$ указан стрелкой.

стью, сформированной имплантированными в кристалл атомами дейтерия. Рассмотрим эти траектории более подробно. Траектория иона при надбарьерном движении (рис. 4а) пересекает плоскости, содержащие атомы дейтерия три раза, в то время как подбарьерная траектория пересекает плоскость атомов дейтерия только два раза. Казалось бы, в первом случае выход реакции должен быть выше. Однако выход реакции зависит также от пути Δz , который проходит ион D^+ внутри области с малым импакт-параметром. На рис. 4в, 4г выделены области для импакт-параметра $b < 0.1 \text{ \AA}$. Легко оценить, что суммарный путь для траектории (рис. 4а) внутри этой области $3\Delta z_a = 3 \times 3 \text{ \AA} = 9 \text{ \AA}$, а для траектории (рис. 4б) $2\Delta z_b = 2 \times 7.5 \text{ \AA} = 15 \text{ \AA}$. Это означает, что в случае подбарьерной траектории выход реакции должен быть выше.

Для оценки влияния каналирования, а именно эффекта увеличения плотности потока ионов на выход реакции было проведено моделирование 5000 траекторий ионов, по которым рассчитан усредненный по всем траекториям импакт-параметр:

$$\langle b \rangle = \frac{\sum_{i=1}^{N_{tr}} \sum_{j=1}^{N_D} b_{ij}}{N_{tr} N_D}. \quad (4)$$

В формуле (4) N_{tr} – число траекторий ионов D^+ , N_D – число имплантированных атомов дейтерия, мимо которых проходит траектория иона. Резуль-

таты расчета $\langle b \rangle$ показаны на рис. 5а. Средний импакт-фактор увеличивается с ростом угла падения ионов θ , так как уменьшается доля ионов, совершающих периодическое движение в режиме каналирования. В частности, значение $\langle b \rangle$ увеличивается в 1.7 раза при увеличении угла падения от нуля до 17° для пучка ионов с угловой расходимостью $\Delta\theta = 0.1\theta_c = 0.358^\circ$. Это должно приводить к уменьшению выхода DD-реакции с увеличением угла падения θ .

По рассчитанным траекториям можно оценить долю траекторий, для которых импакт-параметры взаимодействия ионов D^+ с имплантированными в кристалл атомами меньше двух радиусов дейтерия $2R_D = 3.3 \times 10^{-5} \text{ \AA}$:

$$f(b_{ij} < 2R_D) = \frac{N_{tr}(b_{ij} < 2R_D)}{N_{tr}}. \quad (5)$$

Расчеты показывают, что эта величина уменьшается в два раза с увеличением угла падения θ (рис. 5б). Это также подтверждает влияние каналирования на увеличение выхода реакции DD. На рис. 5 также показана чувствительность ориентационного эффекта к угловой расходимости падающего пучка ионов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследован ориентационный эффект увеличения выхода DD-реакции при облучении дейтерированной мишени Pd ионами D^+ с энергией

20 кэВ. Наблюдалась значительная анизотропия (эффект ориентации) выхода нейтронов. Выход нейтронов был выше в два раза при $\beta = 0^\circ$ по сравнению с выходом при $\beta = \pm 30^\circ$. Ранее подобный эффект наблюдался при облучении ионами D^+ текстурированной мишени из алмаза, полученного методом химического осаждения из газовой фазы. Для объяснения эффекта было проведено компьютерное моделирование траекторий ионов D^+ при каналировании вдоль плоскостей (200) кристалла Pd с учетом угловой расходимости пучка ионов. Было показано, что вероятность реакции может увеличиваться с уменьшением угла падения ионов на кристалл, что согласуется с результатами эксперимента.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена в рамках Программы повышения конкурентоспособности Томского политехнического университета.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Багуля А.В., Далькаров О.Д., Негодаев М.А. и др. // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2013. № 11. С. 3. (Bull. Lebedev Physics Institute. 2013. V. 40. № 11. P. 305.) <https://doi.org/10.3103/S1068335613110018>
2. Багуля А.В., Далькаров О.Д., Негодаев М.А., Русецкий А.С., Чубенко А.П. // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2012. № 12. С. 3. (Bull. Lebedev Physics Institute. 2012. V. 39. № 12. P. 325.) <https://doi.org/10.3103/S1068335612120019>
3. Багуля А.В., Далькаров О.Д., Негодаев М.А. и др. // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2013. № 10. С. 15. (Bull. Lebedev Physics Institute. 2013. V. 40. № 10. P. 282.) <https://doi.org/10.3103/S1068335613100023>
4. Багуля А.В., Далькаров О.Д., Негодаев М.А., Русецкий А.С., Чубенко А.П. // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2012. № 9. С. 3. (Bull. Lebedev Physics Institute. 2012. V. 39. № 9. P. 247.) <https://doi.org/10.3103/S1068335612090011>
5. Bagulya A.V., Dalkarov O. D., Negodaev M. A. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2015. V. 355. P. 340. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2015.01.021>
6. Raichenko V.G., Pleuler E., Lu F.X. et al. // Diam. Relat. Mater. 2012. V. 23. P. 172. <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2011.12.031>
7. Bagulya A.V., Dalkarov O.D., Negodaev M.A. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2017. V. 402. P. 243. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.02.059>
8. Чернов И.П., Русецкий А.С., Краснов Д.Н. и др. // ЖЭТФ. 2011. Т. 139. С. 1088. <https://doi.org/10.1134/S1063776111050104>
9. Takabayashi Y., Bagrov V.G., Bogdanov O.V. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2015. V. 355. P. 188. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2015.02.007>
10. Abdrashitov S.V., Bogdanov O.V., Koroichenko K.B. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B. 2017. V. 402. P. 106. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.03.132>
11. Korotchenko K.B., Tukhfatullin T.A., Pivovarov Y.L., Eikhorn Yu.L. // J. Phys.: Conf. Ser. 2016. V. 732. P. 012031. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/732/1/012031>
12. Штейнберг С.С. Металловедение. Свердловск: Гос. науч.-техн. изд-во литературы по черной и цветной металлургии, 1961. 156 с.

Influence of Flux Peaking Effect on DD Reaction Yield at D^+ Ion Channelling in Deuterated Palladium

O. D. Dalkarov¹, M. A. Negodaev¹, A. S. Rusetskii¹, A. P. Chubenko¹,
Yu. L. Pivovarov², T. A. Tukhfatullin^{2,*}

¹Lebedev Physical Institute RAS (LPI), Moscow, 119991 Russia

²National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, 634050 Russia

*e-mail: tta@tpu.ru

The interaction between the deuterium ion (D^+) beam and deuterium enriched Pd and Ti targets are studied using the HELIS ion accelerator (LPI). The neutron yield is determined by the DD reaction in the deuterated Pd target upon irradiation of its surface with a beam of 20 keV D^+ ions. The neutron flux in the D^+ ion beam direction has been measured as a function of the β angle of the target rotation relative to the beam axis using a multichannel detector based on ^3He counters. Significant anisotropy (orientation effect) of the neutron yield is observed, it is two times higher at $\beta = 0^\circ$ compared with the yield at $\beta = \pm 30^\circ$. The orientation effect can be associated with the channelling and so-called flux-peaking effect. It has been studied by computer simulations using the BCM-2.0 code. The enhanced density of the D^+ flux between (200) planes of the Pd crystal (where the implanted D is located) at zero angle of incidence with respect to these planes makes it possible to qualitatively explain the observed orientation effect. No effect has been observed in a homogeneous target of deuterated titanium.

Keywords: DD reaction yield, interaction of neutrons with matter, ion accelerator, neutron detector, planar channelling, channelling of ions in crystals.