

ТРАНСПОРТНЫЙ КОНТЕЙНЕР ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЙ ДИФФУЗИИ ДЕЙТЕРИЯ В ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛАХ В КАМЕРЕ УСКОРИТЕЛЬНОЙ УСТАНОВКИ МЕТОДОМ NRAOL

© 2019 г. В. Н. Рыбаков^а, В. Б. Выходец^а, Т. Е. Куренных^а, С. И. Обухов^{а,*}

^аИнститут физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН
Россия, 620108, Екатеринбург, ул. Софьи Ковалевской, 18

*e-mail: obuhovsvii@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 28.03.2018 г.

После доработки 14.05.2018 г.

Принята к публикации 03.06.2018 г.

Описана конструкция герметичного транспортного контейнера для монтажа образцов щелочных металлов в вакуумной камере ускорительной установки при измерениях коэффициента диффузии дейтерия в металлах в режиме онлайн. Стекланную ампулу с щелочным металлом вскрывают в атмосфере инертного газа в специальном боксе, и исследуемый образец размещают в цилиндрическом углублении на поверхности плоской металлической пластины контейнера. Затем герметичный транспортный контейнер с образцом монтируют на стационарном держателе в камере ускорительной установки и вскрывают после достижения высокого вакуума в камере. Аттестацию образцов натрия проводят с помощью методики ядерного микроанализа. Показано, что чистота натрия по кислороду, углероду и другим легким элементам удовлетворяет требованиям ускорительной методики.

DOI: 10.1134/S0032816218060290

Диффузия изотопов водорода в металлах является предметом многочисленных исследований [1]. Результаты исследований востребованы в водородной и атомной энергетике, в материаловедении, при разработке различных электрохимических устройств и т.д. Подавляющее большинство опытных данных по диффузии водорода получено с помощью методик, в которых используется изотермический отжиг образцов в водородосодержащих средах, например газообразном водороде. Однако такие методики не пригодны для металлов, которые разрушаются при отжиге в водороде или в которых водород нерастворим. Поэтому в литературе отсутствуют опытные данные по диффузии водорода в щелочных металлах.

В работах [1, 2] была разработана альтернативная методика для измерения коэффициентов диффузии дейтерия, которая не связана с отжигом образцов в водороде. Она основана на применении ускорительных технологий и получила название методики ядерных реакций в режиме онлайн (nuclear reaction analysis online — NRAOL). Исследуемый образец размещается в вакуумной камере ускорительной установки и непрерывно облучается дейтронами. Одновременно с облучением образца проводят все этапы диффузионного эксперимента: создание источника диффузии

атомов дейтерия путем ионной имплантации, изотермический диффузионный отжиг образца и измерение концентрационных профилей атомов дейтерия с помощью методики ядерных реакций. На этом этапе используется ядерная реакция ${}^2\text{H}(d, p){}^3\text{H}$.

В работе [1] измерения коэффициентов диффузии дейтерия с помощью методики NRAOL были проведены на тестовом металле — никеле — в интервале температур от 130 до -60°C . Было показано, что метод NRAOL обеспечивает получение надежных результатов. Для охлаждения и нагрева образцов в камере ускорительной установки использовали проточный жидкий азот и резистивный нагреватель. Характерные времена диффузионных отжигов составили от 1 до 3 ч. Среднеквадратичная ошибка измерений была на уровне от 15 до 30%, что соответствует прецизионным диффузионным исследованиям для водорода в металлах.

Полученные результаты показали перспективность применения метода NRAOL для изучения диффузии дейтерия в щелочных металлах, которые не могут быть подвержены отжигу в водороде. Трудности применения метода NRAOL для экспериментов с щелочными металлами обуслов-

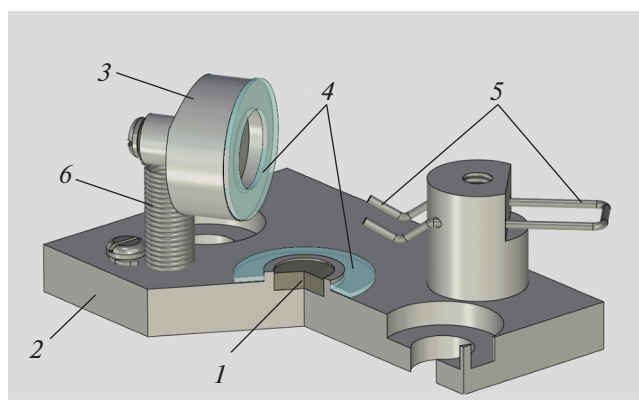


Рис. 1. Схема транспортного контейнера. 1 — образец; 2 — пластина; 3 — колпачок; 4 — вакуумная замазка; 5, 6 — пружины.

лены высокой химической активностью и быстрым окислением образцов на воздухе.

В задачи настоящей работы входили: разработка устройства, пригодного для монтажа образцов щелочных металлов в вакуумной камере ускорительной установки, и проведение исследований с помощью пучков заряженных частиц при приемлемом уровне загрязнения щелочного металла (в данных исследованиях — чистого натрия) атомами примесей в процессе монтажа.

При поставке щелочные металлы хранятся в откачанных стеклянных ампулах. Полное содержание примесей в натрии, который использован в данной работе, не превышало 0.1%. Была разработана следующая технология работы. Вскрытие ампулы с натрием, монтаж образца натрия в транспортном контейнере и его герметизацию после монтажа проводили в специальном боксе в атмосфере газообразного аргона с содержанием кислорода и водяного пара не более 0.5 ppm (производитель бокса — M. Braun Inertgas System GmbH). Для извлечения натрия из ампулы и размещения его в транспортном контейнере, а также для создания плоской рабочей поверхности образца использовали хирургический скальпель. Затем герметичный транспортный контейнер с натрием переносили в вакуумную камеру ускорительной установки и монтировали на стационарном держателе образцов, который позволял проводить нагрев или охлаждение образцов. Конструкции стационарных держателей образцов описаны в работах [1, 3], в данной работе конструкцию держателя не описываем, поскольку она не связана со спецификой работы с щелочными металлами.

Конструкция транспортного контейнера показана на рис. 1. Образец 1 щелочного металла массой ~0.03 г размещали в цилиндрической полости диаметром 6 мм и глубиной 1 мм, выпол-

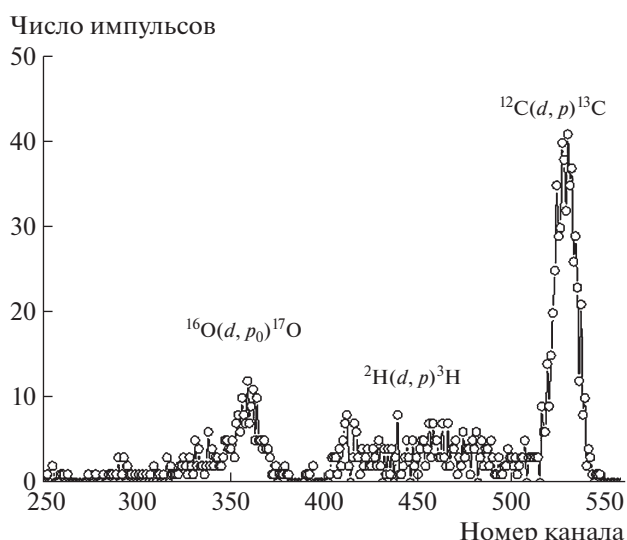


Рис. 2. Спектр продуктов ядерных реакций при облучении натрия дейтронами. Температура образца 150 К.

ненной в пластине 2, изготовленной из дюралюминия марки Д16Т. Использование этого материала обеспечивало хорошую адгезию и тепловой контакт пластины с щелочным металлом и не приводило к загрязнению натрия.

Герметизацию образца натрия осуществляли с помощью колпачка 3. Надежное уплотнение обеспечивалось с помощью вакуумной смазки 4 (DOW Corning High Vacuum Grease — на силиконовой основе) и пружины 5.

В камере ускорительной установки транспортный контейнер механически крепили на стационарном держателе. Пружину 5 присоединяли к винтовому механизму, который обеспечивал ее перемещение с помощью электромотора. Винтовой механизм и электромотор также размещены на стационарном держателе (на рис. 1 не показаны). По достижении высокого вакуума (порядка 10^{-4} – 10^{-5} Па) в камере ускорительной установки транспортный контейнер вскрывали и проводили аттестацию технологии и устройств, использованных в работе. При включении электромотора и перемещении пружины 5 прерывался контакт между пружиной и колпачком 3. Пружина 6, присоединенная к колпачку 3, обеспечивала вскрытие контейнера с образцом натрия, при этом колпачок 3 перемещался в позицию, где он не препятствовал облучению щелочного металла и регистрации продуктов ядерных реакций.

На рис. 2 приведен спектр, полученный по завершении диффузионного эксперимента.

Согласно рис. 2, протоны из реакции $^2\text{H}(d, p)^3\text{H}$ регистрировались в каналах 375–510. В этих каналах отсутствуют вклады от конкурирующих реакций, что является благоприятным обстоятельством.

ством при применении методики NRAOL для исследования диффузии дейтерия в натрии. Из полученных спектров также были получены данные о загрязнении натрия кислородом (каналы 300–375, реакция $^{16}\text{O}(d, p_0)^{17}\text{O}$) и углеродом (каналы 510–550, реакция $^{12}\text{C}(d, p)^{13}\text{C}$). Эти результаты имеют прямое отношение к технологии и устройствам, использованным в работе, они были проанализированы с учетом требований, предъявляемых к диффузионному эксперименту с помощью методики NRAOL. Легирования натрия другими примесями легких элементов не обнаружено.

Для методики NRAOL наличие тонких пленок атомов примесей на поверхности образца не критично, если толщина пленок много меньше глубины исследуемой диффузионной зоны. Для натрия при энергии дейтронов 650 кэВ она составляет около 10 мкм. Тонким пленкам в методике ядерных реакций соответствуют узкие пики в спектрах продуктов ядерных реакций. В данном случае это были пленки, содержащие кислород (каналы 350–375) и углерод (каналы 510–555). Пленки практически отсутствовали в начале эксперимента, и их толщина возрастала за счет адсорбции и полимеризации остаточных газов из вакуума при облучении образца дейтронами.

По оценкам, максимальная толщина этих пленок не превышала 10 нм, что на три порядка меньше глубины диффузионной зоны. Таким образом, полученные данные о толщине тонких пленок на поверхности натрия свидетельствуют об удовлетворительных для применения методики NRAOL вакуумных условиях в камере ускорительной установки. О загрязнении глубинных слоев натрия кислородом свидетельствует форма спектра в каналах 275–350 на рис. 2. Концентрация кислорода не изменялась во время диффузионного эксперимента, ее среднее значение было около 1 ат. %. Очевидно, что загрязнение глубин-

ных слоев кислородом произошло в боксе и/или при переносе транспортного контейнера из бокса в ускорительную установку. Наличие атомов кислорода в кристаллической решетке натрия можно исключить, поскольку кислород в твердых щелочных металлах нерастворим [4], и можно утверждать, что кислород присутствует в натрии в виде включений оксида. Такие включения не могут влиять на энергию активации диффузии дейтерия и при концентрации кислорода на уровне 1 ат. % могут приводить только к небольшим изменениям коэффициента диффузии дейтерия. По нашему мнению, они не превышают нескольких процентов.

Таким образом, разработанные конструкция транспортного контейнера и технология работы с ним обеспечили приемлемый уровень чистоты натрия при проведении исследований диффузии дейтерия в щелочных металлах методом NRAOL в ускорительной установке. Полностью исключить возможность загрязнения натрия при монтаже образцов в камере ускорительной установки нам не удалось, эта задача может быть предметом дальнейших исследований.

Работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО России (тема “Спин”) и частично поддержана РФФИ (проект 17-03-00101).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Выходец В.Б., Нефедова О.А., Обухов С.И., Куренных Т.Е., Данилов С.Е., Выходец Е.В. // Письма в ЖЭТФ. 2018. Т. 107. Вып. 4. С. 215. <https://doi.org/10.7868/S0370274X1804001X>
2. Vykhodets V.B., Kurennykh T.E., Nefedova O.A., Gorelov V.P., Stroeve A.Y., Balakireva V.B., Vykhodets E.V., Obukhov S.I. // Solid State Ionics. 2014. V. 263. P. 152.
3. Kudo H., Kosaku Y., Ando Y., Higara M., Sekine T. // Journal of Nuclear Materials. 1998. V. 258–263. P. 622.
4. Фромм Е., Гебхардт Е. Газы и углерод в металлах. М.: Изд-во “Металлургия”, 1980.