

ИССЛЕДОВАНИЕ КВАНТОВОЙ ДИФфуЗИИ ДЕЙТЕРИЯ В ИНДИИ С ПОМОЩЬЮ УСКОРИТЕЛЬНОЙ МЕТОДИКИ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

В.Б. Выходец, О.А. Нефедова, Т.Е. Куренных, С.Е. Данилов

Институт физики металлов УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия, Институт машиноведения УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия

Исследована диффузия дейтерия в индии. В интервале 200–350 К доминировал массоперенос по механизму надбарьерных прыжков атомов, от 80 до 120 К – по механизму туннелирования. Впервые получены данные о влиянии точечных дефектов на скорость туннелирования водорода в кристаллической решетке твердого тела и установлено, что вакансии в индии при их концентрации не выше 0.1 % увеличивают коэффициенты квантовой диффузии дейтерия примерно в 30 раз

kurennykh@imp.uran.ru

Введение

Существует два механизма миграции атомов в твердых телах: классический - надбарьерные прыжки и квантовый - туннелирование. Оба механизма реализуются одновременно при любых температурах, но почти всегда скорость классической диффузии гораздо больше квантовой и только в редких случаях доминирует массоперенос по механизму туннелирования. Как следствие квантовая диффузия экспериментально слабо изучена, и база опытных данных для нее включает только 4 результата: для протия в Nb и Ta и дейтерия в Na и K. Они получены при низких по диффузионным масштабам температурах, от 90 до 250 К. В перечисленных случаях наблюдение квантовой диффузии базировалось на регистрации перегибов на температурных зависимостях коэффициентов диффузии $D(T)$ в координатах $\log D - 1/T$, выше температуры перегиба доминирует классическая диффузия, а ниже – квантовая. Туннелирование водорода регистрировали только в металлах с ОЦК решеткой.

Для классической диффузии одним из основных научных направлений является исследование влияния вакансий на коэффициенты диффузии. Данные по влиянию вакансий и других точечных дефектов на коэффициенты квантовой диффузии вообще отсутствуют.

Методики и образцы

Основные аргументы, которые мы принимали во внимание при выборе In, состояли и следующем: (1) - он имеет кристаллическую решетку, отличную от ОЦК, а именно объемно-центрированную тетрагональную (ОЦТ); (2) - In удовлетворяет требованиям, связанным со значением температуры Дебая матрицы, для него $T_D = 129$ К; (3) - в решетке In присутствуют близко расположенные тетраэдрические междоузлия, которые могут быть равновесными позициями для атомов водорода; (4) - для ОЦТ решетки In характерно такое же значение плотности упаковки атомов, как в ОЦК металлах, $P = 68$ %.

Методика NRAOL, которая использовалась для измерения коэффициентов диффузии дейтерия, совмещает во времени три этапа диффузионного эксперимента: формирование источника диффузии, диффузионный отжиг образца и измерение концентрационного профиля $c(x,t)$, где c - концентрация дейтерия на глубине x в образце, t - время эксперимента. Образец размещают в вакуумной камере ускорительной установки и непрерывно облучают дейтронами, одновременно в камере проводят изотермический диффузионный отжиг образца и регистрируют спектры протонов - продуктов ядерной реакции ${}^2\text{H}(d,p){}^3\text{H}$.

Эксперименты проводили на 2 МВ ускорителе Ван де Граафа. Энергия частиц первичного пучка дейтронов составляла 650 кэВ, диаметр пучка 2 мм, силу тока пучка поддерживали постоянной с точностью не хуже 10%. Статистическая погрешность в определении дозы облучения образцов была около 1%. Поверхность образца была перпендикулярна первичному пучку. Внутренний источник диффузии атомов дейтерия, который формировался при облучении индия дейтронами, находился на глубине $x_0 = 4.67$ мкм в образце, она определена с помощью программы SRIM. Для регистрации протонов использовали кремниевый поверхностно-барьерный детектор, угол регистрации составлял 160° . Математическую обработку первичных данных проводили с использованием процедуры сравнения спектров от исследуемых образцов и эталонного образца дейтерида $\text{ZrCr}_2\text{D}_{0.12}$ с постоянной по глубине концентрацией дейтерия. В исследуемых образцах индия содержание примесей не превышало 0.01 вес. %.

Для нагрева и охлаждения образцов в камере ускорителя использовали резистивную печь и проточный жидкий азот, его температура была нижней границей диффузионных исследований. Температуру образца при отжигах поддерживали постоянной и измеряли хромель-алюмелевой термопарой с точностью ± 1 К.

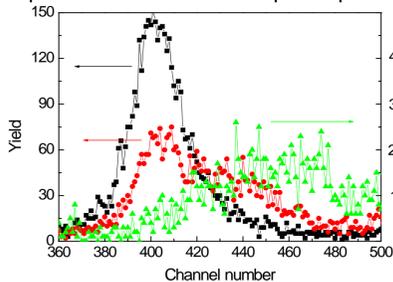


Рис.1. Влияние температуры диффузионного отжига T образцов индия на спектры продуктов ядерной реакции ${}^2\text{H}(d,p){}^3\text{H}$: зеленым цветом показан спектр при $T = 223$ К, красным при $T = 353$ К и черным при $T = 77$ К. Дозы облучения образцов близки друг к другу.

При выполнении исследования по влиянию вакансий на коэффициенты квантовой диффузии сопоставлялись значения коэффициентов квантовой диффузии в образцах с сильно различающимися концентрациями радиационных дефектов и определен тип дефектов, влияющих на D . Коэффициенты квантовой диффузии дейтерия с высокими концентрациями радиационных дефектов обозначали в работе D_1 , а с низкими или нулевой концентрациями - D_2 . Исследования проводили с помощью двух вариантов ускорительной методики ядерных реакций и методики изохронных отжигов. Значения D_1 определяли с помощью методики ядерных реакций в режиме онлайн, NRAOL. При таком режиме концентрация радиационных дефектов возрастает со временем, что дает возможность получить значения D для образцов при наличии в них дефектов. Для получения значений D_2 применяли двухступенчатую схему эксперимента. На первом этапе использовали методику NRAOL при 77 К. В результате этого были получены образцы индия, содержащие радиационные дефекты. К концу первого этапа в образцах были сформированы концентрационные профили дейтерия, которые являлись исходными для следующего этапа. На втором этапе проводили изотермические отжижки этих образцов, но уже без их облучения. Диффузия дейтерия в индии при этом продолжалась, концентрация дефектов уменьшалась и значения коэффициентов квантовой диффузии дейтерия при низких концентрациях радиационных дефектов определяли с помощью классического варианта методики ядерных реакций, NRA. При выборе температур и времен отжига на втором этапе использовали модифицированный вариант методики изохронных отжигов. Температуру отжига T_a на втором этапе варьировали от 77 до 123 К, времена отжигов в соответствии с принципами методики изохронных отжигов были одинаковыми для всех образцов и при всех температурах.

По завершении второго этапа проводили очень короткое облучение для измерения профиля дейтерия в образцах к этому моменту. Его длительность составляла ~ 100 с, это много меньше таковых для первого и второго этапов, ~ 2000 и 3700 с, соответственно. По оценкам изменения профиля дейтерия во время короткого облучения для глубин $x < 0.9x_0$ можно было пренебречь.

Исследование влияния вакансий на коэффициенты квантовой диффузии D проводили при температурах от 77 до 125 К. В этом интервале диффузия дейтерия в индии осуществляется преимущественно с помощью квантового механизма миграции. В индии при температурах от 13 до 100 К вакансии, индуцированные облучением, являются доминирующими точечными дефектами, а выше 100 К они практически отсутствуют.

Решения уравнения диффузии

При низких температурах концентрационные профили дейтерия $c(x,t)$ в образцах при использовании методики NRAOL описывались выражением

$$c(x,t) = c^* \left(1 + \frac{4}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{2n-1} \exp\left(-\frac{D\pi^2(2n-1)^2}{4x_0^2} t\right) \cos\frac{\pi(2n-1)x}{2x_0} \right)$$

где c^* - концентрация атомов в твердом растворе на границе с дейтеридом, т.е. $c^* = c(x_0,t)$. При имплантации образуется дейтерид, находящийся в равновесии с твердым раствором

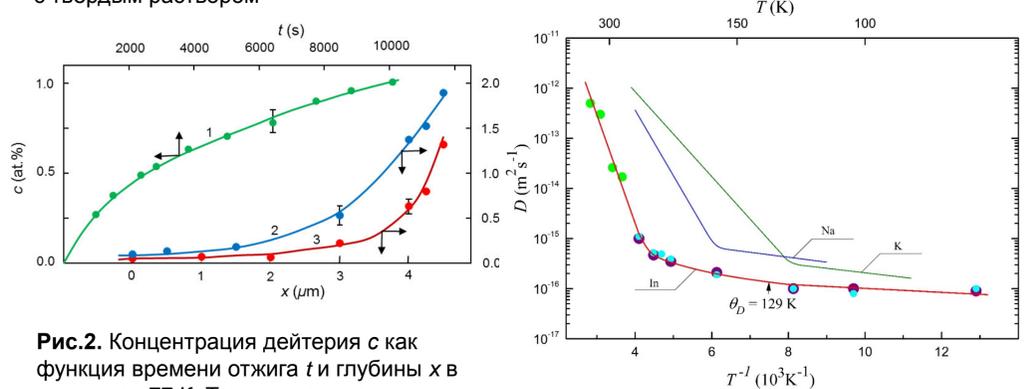


Рис.2. Концентрация дейтерия c как функция времени отжига t и глубины x в индии при 77 К. Точки показывают экспериментальные данные, линии представляют аналитические зависимости согласно уравнению (1). Кривая 1 соответствует глубине в образце $x = 3.58$ мкм, кривые 2, 3 получены при времени отжига $t = 10120$ и 2067 с, соответственно

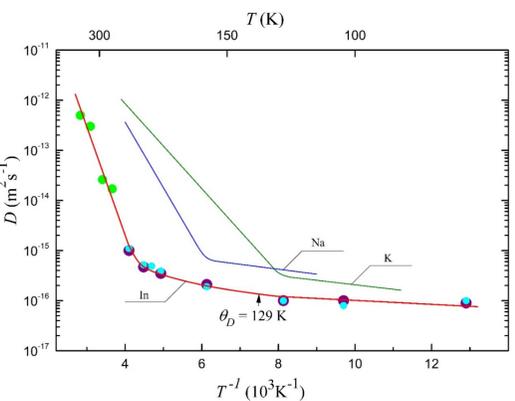


Рис.3. Температурные зависимости коэффициентов диффузии D дейтерия в Na, K и In.

При применении двухступенчатой схемы эксперимента коэффициенты диффузии D_2 находили с помощью выражения

$$c_2(x,t) = c^* - \frac{8c^*}{\pi^2} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{(2m-1)^2} \exp\left(-\frac{(2m-1)^2 \pi^2 D_1 t_1}{4x_0^2}\right) + \frac{16c^*}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n+1} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D_2 t_2}{x_0^2}\right) \cos \frac{n\pi x}{x_0} \left(\sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{(2m-1)^2 - 4n^2} \exp\left(-\frac{(2m-1)^2 \pi^2 D_1 t_1}{4x_0^2}\right) \right)$$

где t_1 и t_2 - длительности первого и второго этапа, соответственно.

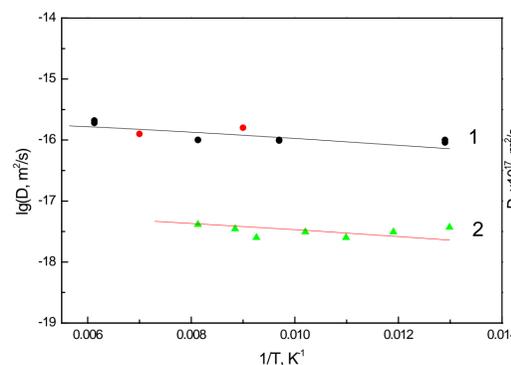


Рис.4. Температурные зависимости коэффициентов диффузии D дейтерия индии, 1- при максимальной концентрации вакансий, 2- после отжига радиационных дефектов.

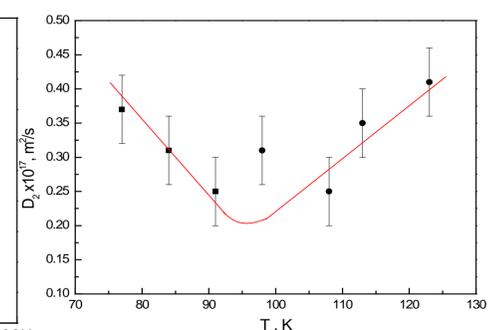


Рис.5. Зависимость коэффициента квантовой диффузии дейтерия D_2 в индии от температуры отжига T_a образцов после их облучения дейтронами при 77 К.

Из рис. 5 видно, что имеет место немонотонная зависимость коэффициента квантовой диффузии D_2 от температуры отжига T_a . Ее интерпретация является однозначной: (1) - радиационные дефекты увеличивают скорость туннелирования дейтерия в индии; (2) - уменьшение D_2 при возрастании температуры отжига от 77 до 91 К обусловлено уменьшением концентрации дефектов в образце; (3) - монотонный характер зависимости $D_2(T_a)$ выше 95 К свидетельствует об отсутствии при этих температурах влияния радиационных дефектов на коэффициенты квантовой диффузии.

На рис. 5 при 95 К наблюдается минимум на зависимости $D_2(T_a)$, что практически совпадает с пиком стадии III изохронных отжигов, связанной с аннигиляцией вакансий при 100 К. Это дает основание утверждать, что к возрастанию скорости туннелирования дейтерия кристаллической решетке индия приводят вакансии.

Заключение

В работе впервые были получены данные о квантовой диффузии дейтерия в индии и о влиянии вакансий на коэффициенты квантовой диффузии в твердых телах.