

ОСОБЕННОСТИ ЭМИССИИ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ ИЗ ОБРАЗЦОВ Тi И Pd ПРИ ИМПЛАНТАЦИИ В НИХ ИОНОВ ДЕЙТЕРИЯ

*В.Ф. Зеленский, В.Ф. Рыбалко, Г.Д. Толстолицкая, А.Н. Морозов
ННЦ ХФТИ, г. Харьков, Украина*

Изучены энергетические спектры заряженных частиц, эмитируемых из Ti- и Pd- мишеней в процессе их насыщения дейтерием ионной имплантацией. Помимо пиков протонов, трития и гелия-3, обусловленных протеканием в мишенях d-d-реакций, в спектрах наблюдаются слабые дополнительные пики с максимумами при энергиях 3.15, 2.2 и 1.3 МэВ. Интенсивности этих пиков по отношению к пику протонов составляют соответственно 0.005, 0.03 и 0.08. Результаты опытов с использованием тормозящей Ni-пленки известной толщины (0,57 мкм) для оценки удельных потерь энергии приводят к заключению, что наблюдаемые дополнительные пики обусловлены эмиссией трех групп α -частиц с первоначальной энергией 3.5, 2.5 и 1.7 МэВ соответственно. Обсуждается вопрос о возможных источниках происхождения α -частиц.

ВВЕДЕНИЕ

Имплантация ионов дейтерия с энергиями ~ 10 кэВ/d в металлические мишени сопровождается эмиссией продуктов d-d-реакций: заряженных частиц ${}^3\text{He}$ (0,82МэВ), T (1,01МэВ), p (3,02МэВ) и нейтронов (2,45МэВ) [1]. Использование полупроводниковых детекторов позволяет получить хорошо разрешенный энергетический спектр заряженных продуктов d-d-реакций.

В последнее время некоторые исследователи обратили внимание на то, что в спектрах, полученных в процессе имплантации ионов дейтерия, помимо пиков, соответствующих протонам, тритию и гелию-3, наблюдаются также слабые дополнительные пики, происхождение которых пока точно не установлено [2,3].

Наличие дополнительных пиков в спектрах заряженных частиц, эмитируемых из Pd и Ti при имплантации в них ионов дейтерия, мы наблюдали еще в 1989 г. [4,5], но условия появления этих пиков и их поведение не исследовались.

В настоящей работе изложены результаты экспериментов, направленных на более детальное исследование эмиссии заряженных частиц из мишеней Pd и Ti с целью изучения закономерностей появления и поведения дополнительных пиков.

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Основные эксперименты были выполнены на установке СКИФ, описанной в работе [6].

Экспериментальная процедура сводилась к облучению исследуемых образцов ионами дейтерия и регистрации энергетических спектров заряженных частиц, эмитируемых из мишени в процессе облучения. Параллельно велась регистрация нейтронов с помощью нейтронного детектора.

В качестве мишеней использовались тонкие пленки Pd ($\delta \sim 150 \dots 200$ нм), полученные осаждением в сверхвысоком вакууме на подложки из предварительно окисленной никелевой фольги толщиной ~ 100 мкм. Титановые пленки такой же толщины были

осаждены на подложки из Mo-фольги ($\delta \sim 100$ мкм). Помимо тонких пленок в качестве мишеней использовались также массивные образцы Ti в виде фольги толщиной ~ 200 мкм. Массивный палладий в качестве мишеней не использовался в связи с быстрым диффузионным размыванием имплантированного слоя вглубь образца [4].

Облучение мишеней хорошо сепарированным пучком ионов D_2^+ с энергией 25кэВ проводилось в вакууме $P = (1 \dots 2) \cdot 10^{-5}$ Па. Однако метод не позволял разделять ионы D_2^+ и DH_2^+ , поэтому не исключалась возможность загрязнения пучка примесями легкого изотопа водорода в случае наличия его в исходном газе. Температура мишеней во время облучения поддерживалась на уровне 100 К. Ток пучка составлял 10...13мкА, плотность тока 30...40мкА/см². Использование более интенсивных пучков приводило к заметному повышению температуры мишени.

Энергетический спектр заряженных частиц, эмитируемых мишенью в процессе облучения, регистрировался полупроводниковым барьерным детектором с многоканальным амплитудным анализатором импульсов АМА-3 на выходе. Детектор располагался на расстоянии от 28мм до 31мм от центра облучаемого участка мишени. Ось детектора составляла угол $\alpha \approx 135^\circ$ с направлением ионного пучка. Эффективность счета использовавшихся полупроводниковых детекторов рассчитывалась с учетом геометрии опыта, площади детектора и составляла для различных детекторов от $1,5 \cdot 10^{-3}$ до $3 \cdot 10^{-3}$ имп/част.

Для предотвращения «засветки» детектора интенсивными потоками обратнорассеянных частиц первичного пучка, электронной и ионной эмиссией рабочей поверхности детектора защищалась пленкой Ni толщиной $\sim 0,55$ мкм, поглощающей эти низкоэнергетические излучения. Наличие защитной пленки приводило к сдвигу пиков на шкале энергий в сторону меньших ее значений. Это обстоятельство учитывалось при определении исходной энергии регистрируемых частиц. Расчет энергии частиц производился с использованием программы SRIM [7].

Калибровка каждого из использовавшихся детекторов проводилась с помощью эталонных источников ^{241}Am , ^{238}Pu и ^{239}Pu по α -частицам с энергиями 5150, 5442, 5484 и 5496 кэВ.

Поток нейтронов измерялся детектором нейтронов с датчиком, содержащим ^3He . Градуировка детектора была проведена с помощью эталонного Pu-Be -источника нейтронов.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Энергетические спектры заряженных частиц регистрировались в течение всего периода облучения мишени. Регистрация спектров велась в двух режимах. В первом из них в течение всего времени облучения велась непрерывная запись спектра. Полученный интегральный спектр выводился на диаграммную ленту. Второй режим предусматривал запись спектра за 10^3с (или кратный этой величине интервал времени) с последующей его распечаткой. Затем измерялся спектр за последующие 10^3с и т.д. Каждый из полученных спектров привязывался к интервалу значений дозы облучения, в котором он был получен.

Поскольку в процессе облучения с ростом дозы в мишени увеличивалась концентрация имплантированного дейтерия, соответственно возрастал и выход продуктов d-d-реакции на единицу дозы, который мог служить показателем уровня насыщения мишени дейтерием. В связи с этим регистрация спектров в режиме коротких экспозиций была использована нами для построения зависимостей $Y/\Delta D$ от D , где Y - выход заряженных частиц; D - доза облучения; ΔD - прирост дозы. По этим зависимостям контролировался уровень насыщения дейтерием облучаемой мишени на каждой стадии облучения.

Запись спектров в течение интервалов, коротких по сравнению с общим временем облучения, позволяла также более точно определить значения доз, после достижения которых в спектре появляются дополнительные пики. Интегральные спектры заряженных частиц позволяют более отчетливо выявить слабые пики и оценить их интенсивность по отношению к основным пикам спектра.

Всего облучению было подвергнуто 18 образцов Ti и 13 образцов Pd . Хотя в отношении накопления имплантированного дейтерия в пленках и массивных образцах Ti наблюдается некоторое различие [8], никакой разницы между ними в отношении появления дополнительных пиков мы не обнаружили.

Типичные энергетические спектры, полученные для Pd -и Ti -мишеней, приведены на рис.1 и 2 соответственно.

На рис.3 показаны зависимости выходов заряженных продуктов d-d-реакций от дозы облучения. Видно, что выходы заряженных частиц вначале практически линейно растут с дозой облучения, а затем плавно выходят на плато, свидетельствующее о достижении предельно допустимой концентрации дейтерия в металле. Причем, уровень $Y/\Delta D$, при котором достигается предельная концентрация дейте-

рия в Ti , в 3 раза превышает эту величину для Pd . Из этого следует, что если предельное стехиометрическое отношение для Ti составляет 2 атома дейтерия на атом металла, то для Pd эта величина близка к $\sim 0,7$, что согласуется с литературными данными [9].

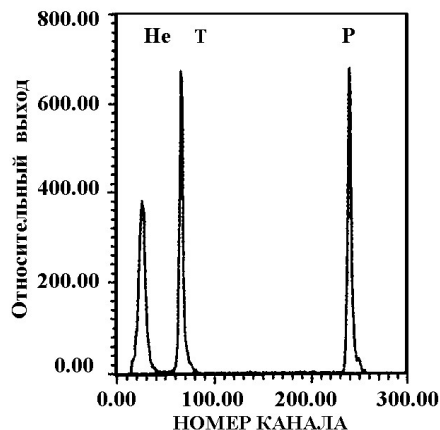


Рис.1. Энергетический спектр заряженных частиц с поверхности Pd при облучении ионами D_2^+ с энергией 25 кэВ. Справа от протонов наблюдается дополнительный пик

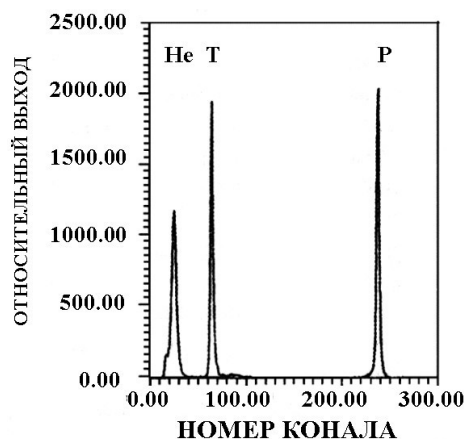


Рис.2. Энергетический спектр заряженных частиц с поверхности Ti при облучении ионами D_2^+ с энергией 25 кэВ. В области 90 канала ($E \sim 1,3\text{ МэВ}$) наблюдается дополнительный пик

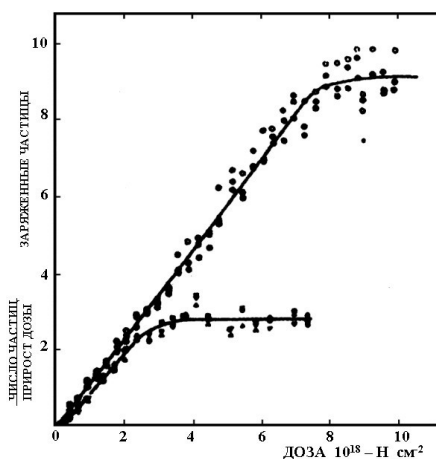


Рис.3. Зависимость выходов заряженных ча-

стиц от дозы облучения для Pd (нижняя кривая) и Ti (верхняя кривая):

▼ ○ - ^3He ; ● ■ - T; ▲ ○ - P

Следует отметить, что почти все исследованные мишени были облучены до доз, превышающих минимально необходимую для выхода кривой $Y/\Delta D(D)$ на плато, причем для отдельных мишеней дозы облучения превосходили минимально необходимую в 2-2,5 раза. Это обстоятельство учитывалось при оценках количества трития, нарабатываемого в мишенях в процессе облучения.

Анализ всей совокупности полученных спектров показал, что, как и в наших опытах 1989 г. [4], в них присутствуют дополнительные пики, не принадлежащие заряженным продуктам d-d-реакций.

И для титановых, и для палладиевых мишеней дополнительные пики наблюдаются при одних и тех же энергиях $\sim 1,3$, 2,2 МэВ и $\sim 3,15 \dots 3,20$ МэВ, причем последний из них чаще наблюдается для Pd-мишеней.

Главные особенности наблюдаемых дополнительных пиков состоят в следующем:

- 1) их амплитуды на 2-3 порядка меньше, чем основных пиков спектра;
- 2) положение максимумов этих пиков на энергетической шкале не является точно фиксированным и может меняться от мишени к мишени, но величина смещения пика от среднего значения его энергии, как правило, не превышает $\pm 10\%$;
- 3) дополнительные пики отчетливо проявляются не на всех мишенях; причем, частота их появления в случае Ti и в случае Pd различна; так, например, пик с максимумом $\sim 1,3$ МэВ в случае Ti обнаруживается в спектрах $\sim 70\%$ исследованных мишеней, в то время как для Pd - только в $\sim 30\%$ случаев;
- 4) только в отдельных случаях в спектре одновременно наблюдаются все три дополнительных пика; в большинстве случаев в спектре присутствует только один или два дополнительных пика.

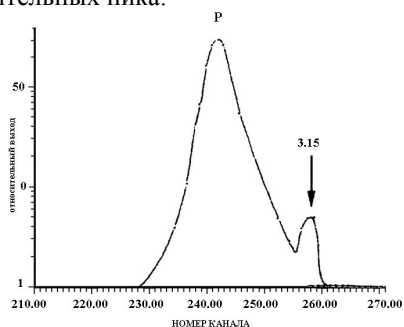


Рис.4. Участок энергетического спектра протонов. В области 257 канала находится максимум пика 3,15 МэВ

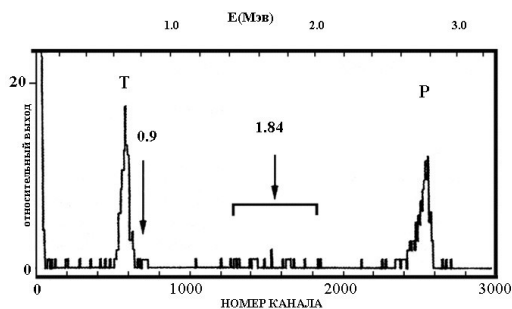


Рис.5. Энергетический спектр от образца Ti с дополнительным пиком при $E \sim 1,3$ МэВ

На рис.4 и 5 показаны энергетические спектры, в которых отчетливо проявляются пики 3,15 и 1,3 МэВ соответственно.

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Все основные особенности дополнительных пиков – низкие амплитуды, смещение максимума на энергетической шкале, непостоянство их появления – отмечались и в работах [2,3]. В этом отношении наши данные хорошо согласуются с данными этих работ.

Существенное различие наших результатов и результатов работ [2,3] заключается в том, что в области энергий 1...3 МэВ (между пиками трития и протонов) авторы работ [2,3] наблюдали только один сильно размытый пик с максимумом вблизи значения энергии $\sim 2,4$ МэВ, в то время как в наших экспериментах в этом энергетическом интервале наблюдалось два пика с максимумами при энергиях 1,3 и 2,2 МэВ. Возможными причинами такого расхождения могут быть заметные различия в экспериментальных условиях.

Во-первых, различие в энергиях ионных пучков, использовавшихся при имплантации. В наших опытах энергия бомбардирующих частиц составляла 12,5 кэВ/d, в то время как в работе [2] - от 20 до 300 кэВ/d. Использование дейтронов с энергией в несколько сот килоэлектронвольт приводит не только к заметному увеличению пробега имплантируемых ионов, увеличению на несколько порядков сечений реакций синтеза, но и к изменению пространственного распределения продуктов этих реакций.

Во-вторых, причиной расхождения результатов экспериментов могут быть также различия в температурах, при которых находились мишени в процессе облучения. Как уже упоминалось выше, в наших опытах облучение велось при $T \sim 100$ К, в [2] - при $T \sim 300$ К. Температура мишени, особенно в случае Pd, может оказывать очень заметное влияние на распределение имплантированного дейтерия в объеме образца, и, тем самым, влиять как на выход продуктов d-d-реакций, так и на протекание инициируемых ими вторичных реакций.

Дополнительные пики в спектрах наблюдались уже на начальных стадиях облучения. Их интенсивность возрастала с увеличением дозы облучения. Максимальные значения интенсивностей пиков с максимумами при энергиях $\sim 1,3$, 2,2 и 3,15 МэВ со-

ставляли соответственно 0,08, 0,03, 0,005 от интенсивности пика протонов в спектре.

Для выяснения природы частиц, с которыми связано появление дополнительных пиков в спектрах, мы провели опыты, в которых полупроводниковый детектор экранировался дополнительной никелевой пленкой толщиной 0,57 мкм.

На рис.6 показан исходный спектр, полученный с одной защитной пленкой на детекторе. Спектр набран при относительно малом времени экспозиции ($3 \cdot 10^3$ с), поэтому дополнительные пики в нем проявляются как два пакета импульсов с центрами тяжести вблизи ~1,3 и 2,2 МэВ.

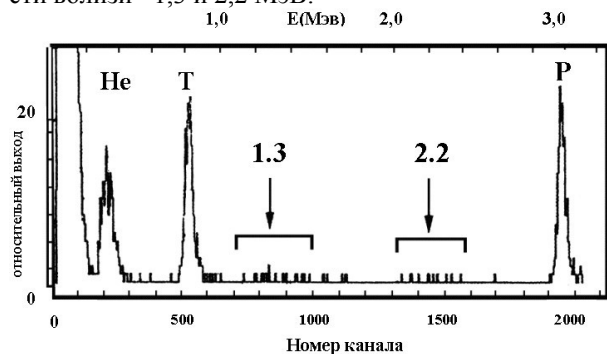


Рис.6. Энергетический спектр от образца Ti, иллюстрирующий две группы импульсов с энергиями 1,3 и 2,2 МэВ

На рис.7 показан спектр, полученный в течение 10^3 с при наличии перед детектором дополнительной никелевой пленки. Как видно, наличие дополнительной пленки приводит к заметной модификации спектра. Как и следовало ожидать, исчез пик гелия-3, примерно на 0,1 МэВ сдвинулся влево пик трития и слегка сместился в том же направлении пик протонов. Группа импульсов с центром около 2,2 МэВ сместилась так, что ее центр тяжести оказался на отметке ~1,84 МэВ, а вторая группа (~1,3 МэВ) оказалась под пиком трития. Ее след обнаруживается справа от этого пика, и это позволяет оценить положение ее центра тяжести. Согласно такой оценке центр находится вблизи значения ~0,9 МэВ.

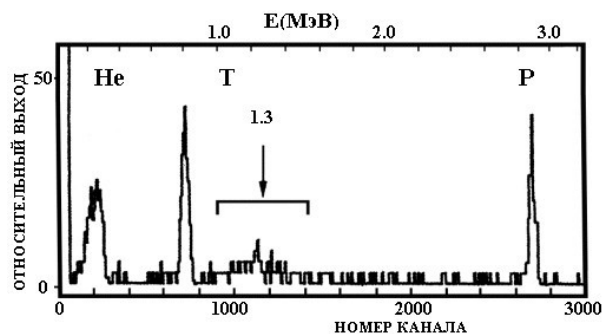


Рис.7. Энергетический спектр от образца Ti, полученный в условиях наложения дополнительной пленки Ni на детектор

Принимая во внимание первоначальное положение дополнительных пиков на шкале энергий, а также учитывая величины их смещения и сравнивая последние с расчетными величинами потерь энергии частицами различной природы в никелевой пленке

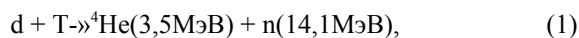
толщиной 0,57 мкм, можно сделать заключение о природе регистрируемых частиц.

Как показали результаты вышеупомянутой процедуры, оба дополнительных пика, расположенных в исходном спектре между протонами и тритием, с достаточно высокой точностью могут быть идентифицированы как α -частицы с исходными энергиями 2,5 и 1,7 МэВ соответственно. Исчезновение третьего дополнительного пика, наблюдаемого в исходном спектре при энергии 3,15 МэВ, при экранировании детектора частиц второй никелевой пленкой вероятнее всего связано с его сдвигом в область интенсивного пика протонов, увеличение амплитуды которого трудно зарегистрировать из-за малости добавки.

Если это предположение верно, тогда смещение пика с максимумом 3,15 МэВ должно оцениваться величиной ~0,3 МэВ, сравнение которой с расчетными значениями потерь энергии в Ni заряженными частицами различной природы приводит к выводу, что пик при 3,15 МэВ соответствует α -частицам. Исходная энергия этих частиц составляет 3,5 МэВ.

При выяснении источников происхождения частиц, создающих дополнительные пики в спектрах, естественно прежде всего рассмотреть в качестве таких источников классические реакции синтеза, протекающие в результате взаимодействия дейтериевого пучка с накопленными в мишени продуктами d-d реакций (P, T, ^3He).

В частности, происхождение α -частиц с энергией 3,5 МэВ можно объяснить реакцией:



Однако количество трития, нарабатываемогося в наших опытах по известным реакциям d-d-синтеза, далеко недостаточно для объяснения интенсивности наблюдаемого пика. Действительно, как упоминалось выше, интенсивность пика с максимумом при $E=3,15$ МэВ, который соответствует α -частицам с $E=3,5$ МэВ, составляет 0,5% интенсивности протонного пика. По грубым оценкам, чтобы обеспечить выход α -частиц (3,5 МэВ) ~0,5% от выхода протонов, концентрация трития в мишени должна составлять $\sim 10^{-5}$ от концентрации дейтерия в мишени. В Ti ожидаемая предельная концентрация дейтерия $\sim 1,2 \cdot 10^{23}$ част./см³. Отсюда следует, что наблюдаемый экспериментальный выход α -частиц с энергией 3,5 МэВ, может быть достигнут при концентрациях трития в мишени $n_T \approx 10^{18}$ част./см³.

Оценка концентрации трития, нарабатываемого по реакции



в течение 10 ч облучения титановой мишени, насыщенной дейтерием до предельной концентрации, дает величину $\sim 1 \cdot 10^{13}$ част./см³. Эта величина на 5 порядков ниже, чем та, которая необходима для получения экспериментально измеренного выхода α -частиц. Отсюда следует, что либо тритий накапливается в мишени в процессе облучения в количествах, существенно превышающих те, которые могут быть получены за счет реакции (2), либо появление α -ча-

стиц с энергией 3,5МэВ не связано с протеканием реакции (2).

Происхождение эмиссии α -частиц с энергиями 2,5 и 1,7МэВ также нельзя объяснить классическими реакциями синтеза.

Из сказанного следует, что наблюдаемые нами особенности эмиссии высокоэнергетических заряженных частиц из образцов Ti и Pd при имплантации в них ионов дейтерия не могут быть объяснены с позиций классического синтеза изотопов водорода и могут свидетельствовать в пользу реальности влияния окружения на протекание ядерных реакций в конденсированных средах.

ЛИТЕРАТУРА

- 1.А.А. Арцимович. *Управляемые термоядерные реакции*. М: Изд-во физ.-мат. лит., 1961.
2. T. Wang, K. Ochiai, Z. Wang, K. Maruta, G.Jing, T.Iida, A. Takahashi. Anomalous radiation induced by 1-300 keV deuteron ion beam implantation on palladium and titanium // *Proc. of ICCF-7*, April, 1998, Canada, p. 490-494.
3. T. Wang, K. Ochiai, K. Maruta, T.Iida, A. Takahashi. Study of possible indirect fusion reaction in solids // *Proc. of ICCF-7*, April, 1998, Canada, p. 485-488.
- 4.В.Ф. Зеленский, В.Ф. Рыбалко, А.Н. Морозов, Г.Д. Толстолуцкая, В.Г. Кулиш, С.В. Пистряк, И.С. Мартынов. Эксперименты по холодному ядерному синтезу в Pd и Ti, насыщенных дейтерием методом ионной имплантации: Препринт ХФТИ 89-61. Харьков: 1989, 25 с.
- 5.В.Ф. Зеленский, В.Ф. Рыбалко, А.Н. Морозов, Г.Д. Толстолуцкая, В.Г. Кулиш, С.В. Пистряк, И.С. Мартынов. Эксперименты по холодному ядерному синтезу в Pd и Ti, насыщенных дейтерием методом ионной имплантации // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1990, вып. 1(53), с. 65-71.
- 6.В.В. Ружицкий, Ю.А. Грибанов, В.Ф. Рыбалко, С.М. Хазан, И.С. Мартынов, А.Н. Морозов. Многоцелевая экспериментальная установка «СКИФ» // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1989, вып. 4(51), с. 84-89.
- 7.J.F. Ziegler, J.P.Biersack, U. Littmark, SRIM, <http://www.research.ibm.com>
- 8.В.Ф. Рыбалко, И.М. Неклюдов, В.Г. Кулиш, С.В. Пистряк, А.Н. Морозов. Термодесорбция ионно-имплантированного дейтерия из тонких пленок и массивных образцов титана // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1992, вып. 1(58), 2(59), с. 59-65.
- 9.W. Moller, F. Besenbacher, J. Bottiger. Saturation and isotope mixing during low-temperature implantations of hydrogen into metals // *Appl. Phys.* 1982, v. A27, p. 19.

ОСОБЛИВОСТІ ЕМІСІЇ ВИСОКОЕНЕРГЕТИЧНИХ ЗАРЯДЖЕНИХ ЧАСТОК ІЗ ЗРАЗКІВ ТІ ТА PD ПРИ ІМПЛАНТАЦІЇ В НИХ ІОНІВ ДЕЙТЕРІЮ

В.Ф. Зеленський, В.Ф. Рыбалко, Г.Д. Толстолуцька, А.М. Морозов

Вивчено енергетичні спектри заряджених часток, що емітують із Ti та Pd мішеней у процесі їх насичення дейтерієм під час низькотемпературної іонної імплантації. Крім піків протонів, тритія та гелія-3, зумовлених протіканням у мішенях d-d реакцій, у спектрах спостерігаються додаткові піки з максимумами при енергіях 3.15, 2.2 та 1.3 MeV. Інтенсивності цих піків по відношенню до піку протонів становлять відповідно, 0.005, 0.03 та 0.08. Результати випробувань з використанням гальмуючої Ni плівки певної товщини (0,57мкм) для оцінки питомих втрат енергії, приводять до висновку, що додаткові піки, які спостерігаються, зумовлені емісією трьох груп α -часток з первинною енергією 3.5, 2.5, та 1.7 MeV відповідно. Обмірковується питання про можливі джерела походження α -часток

FEATURES OF EMISSION OF HIGH-ENERGY CHARGED PARTICLES FROM TI AND PD TARGETS DURING IMPLANTATION IN THEM OF DEUTERIUM IONS

V.F. Zelensky, V.F. Rybalko, G.D. Tolstolutska, A.N. Morozov

The spectra of energies of charged particles emitted from Ti and Pd targets are investigated during their saturation with deuterium ions. Besides peaks of protons, tritium and helium-3 bounded to d-d reactions in targets weak additional peaks with maxima at energies 3.15, 2.2 and 1.3 MeV are observed in spectra. Intensities of these peaks compared to peak of protons make accordingly 0.005, 0.03 and 0.08. Data of experiments with using of known thickness Ni film (0.57 microns) between the targets and the silicon detector for an estimation of specific losses of energy result in the conclusion, that the observable additional peaks are caused by emission of three groups (α -particles) with initial energy 3.5, 2.5 and 1.7 MeV, respectively. Probable sources of α -particles are discussed.