

## ТЕКСТУРИРОВАННЫЕ МИШЕНИ ИЗ ДЕЙТЕРИДОВ $TiD_2$ , $ZrD_2$ , $NbD$ И $CrD_2$ В ЭКСПЕРИМЕНТАХ ПО ИЗУЧЕНИЮ МЕХАНИЗМОВ ПРОТЕКАНИЯ $pd$ -, $dd$ -РЕАКЦИЙ В ОБЛАСТИ АСТРОФИЗИЧЕСКИХ ЭНЕРГИЙ

*В. М. Быстрицкий*<sup>a,1</sup>, *Ю. Ж. Тулеушев*<sup>b</sup>,  
*Г. Н. Дудкин*<sup>a</sup>, *М. Филипович*<sup>c</sup>, *Е. А. Жаканбаев*<sup>b</sup>

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

<sup>b</sup> Институт ядерной физики Министерства энергетики, Алма-Ата, Казахстан

<sup>a</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Томск, Россия

<sup>c</sup> Факультет энергии и топлива, Университет науки и технологий, Краков, Польша

В работе приводится описание различных методов нанесения тонких слоев из дейтеридов (гидридов)  $TiD_2$  ( $TiH_2$ ),  $ZrD_2$  ( $ZrH_2$ ),  $NbD$  ( $NbH$ ) и  $CrD_2$  ( $CrH_2$ ) на подложки из нержавеющей стали, меди и кремния. Рассмотрен метод магнетронного нанесения нанослоев из указанных дейтеридов (гидридов) с различной текстурой. Предложена технология создания мишеней из дейтеридов (гидридов) титана, циркония, ниобия и хрома, которая позволит однозначно проверить гипотезу о существовании эффекта усиления  $dd$ - и  $pd$ -реакций за счет наличия процесса каналирования дейтронов (протонов) в кристаллах указанных дейтеридов.

The paper describes various methods for depositing thin layers of the deuterides (hydrides)  $TiD_2$  ( $TiH_2$ ),  $ZrD_2$  ( $ZrH_2$ ),  $NbD$  ( $NbH$ ), and  $CrD_2$  ( $CrH_2$ ) on stainless steel, copper, and silicon substrates. The method for the magnetron sputtering of deuteride (hydride) nanolayers with different textures is considered. The technology for making titanium, zirconium, niobium, and chromium deuteride (hydride) targets is proposed, which will definitely verify the hypothesis of the enhancement of  $dd$  and  $pd$  reactions due to the channeling of deuterons (protons) in the crystals of the above deuterides.

PACS: 29.25.-t; 25.45.-z; 95.30.Cq

### ВВЕДЕНИЕ

В работах [1, 2] впервые был экспериментально обнаружен эффект усиления выхода нейтронов из реакции  $D(d, n)^3He$ , протекающей в дейтериде титана ( $TiD_2$ ) с текстурой [100], в области ультранизких энергий столкновения дейтронов по сравнению со случаем использования мишени с текстурой [111].

---

<sup>1</sup>E-mail: bystvm@jinr.ru

На основании полученных результатов было высказано предположение о наблюдаемом усилении выхода реакции  $D(d, n)^3He$  за счет наличия эффекта каналирования дейтронов, падающих на мишень, в ее кристаллической структуре. Выполненные исследования [1, 2] по изучению механизмов протекания  $dd$ -реакции в мишенях из дейтерида титана и анализ полученных данных с учетом кристаллического состояния мишени не могут отвергать существование популярной модели электронного экранирования при взаимодействии дейтронов в металлической мишени, насыщенной дейтерием. Для корректного определения вкладов в выход нейтронов из  $dd$ -реакции за счет электронного экранирования и каналирования необходимо провести серию экспериментов по изучению механизмов протекания данной реакции при различных ориентациях кристаллической мишени из дейтеридов различных металлов.

### МЕТОДЫ ПОЛУЧЕНИЯ ДЕЙТЕРИДОВ МЕТАЛЛОВ

На первом этапе проведения намеченных исследований  $dd$ -реакции возникла задача получения мишеней из дейтеридов (гидридов) титана, циркония, ниобия и хрома с различной текстурой.

В принципе существует четыре способа получения мишеней из дейтеридов (гидридов)  $TiD_2(TiH_2)$ ,  $ZrD_2(ZrH_2)$ ,  $NbD(NbH)$  и  $CrD_2(CrH_2)$ :

- магнетронное распыление металлов в среде дейтерия (водорода) [3–9];
- электрохимический метод нанесения покрытий из дейтеридов металлов [10];
- насыщение металлических мишеней дейтерием (водородом) по методу Сивертса [10, 15];
- метод имплантации ионов дейтерия (водорода) в металлы [16, 17].

Метод магнетронного синтеза гидридов (дейтеридов) переходных металлов [3–9] является новым и принципиально отличается от методов: наводороживания металлов или тонких пленок металлов путем нагрева их в среде изотопов водорода [10–15]; электрохимического насыщения поверхности металла водородом при катодном процессе [10]; имплантации ионов изотопов водорода в металлы [16, 17].

К недостаткам методов наводороживания металлов [10–17] можно отнести неоднородность содержания дейтерия (водорода) по глубине наносимого слоя дейтерида металла, а также механическую неустойчивость полученных гидридных фаз, в результате чего дейтерий (водород) выделяется в отдельную фазу, что приводит, в свою очередь, к блистерингу полученных покрытий из дейтеридов (гидридов) металлов и их механическому разрушению.

Для корректного количественного определения вкладов процессов каналирования и электронного экранирования в эффект усиления выходов  $dd$ -,  $pd$ -реакций в области ультранизких энергий столкновения частиц во входных каналах указанных реакций необходимо иметь информацию об ориентации кристаллической решетки мишени относительно направления падающего (на нее) пучка ускоренных частиц (дейтронов, протонов). Это связано с тем, что существуют различные ориентации кристаллов дейтеридов металлов: с полным затенением дейтронов (протонов) атомами металла; с отсутствием затенения. На рис. 1, в качестве примера, приведена схема расположения атомов металла и дейтерия для кубической гранцентрированной решетки дейтерида титана в двух ориентациях. В случае изучения  $dd$ -реакции для ориентации кристаллов дейтерида титана с индексом Миллера [111] (см. рис. 1, *a*) падающие дейтроны пучка испытывают столкновение

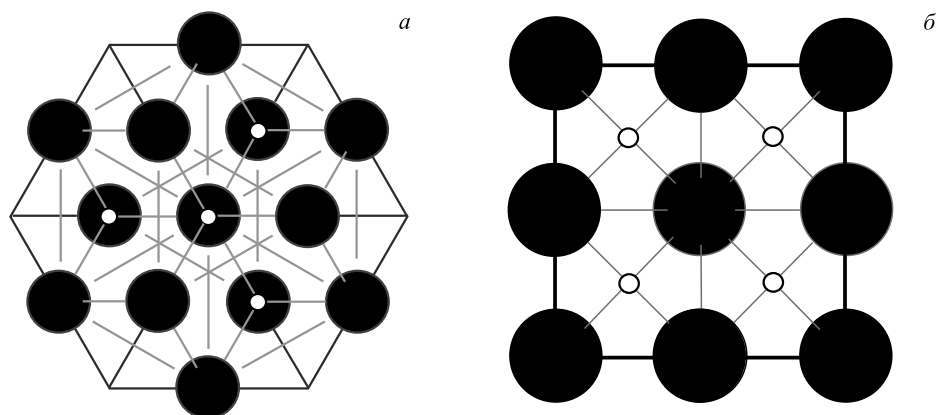


Рис. 1. Решетка  $\text{TiD}_2$ : *a*) направление  $[111]$ ; *б*) направление  $[100]$ . Пустые маленькие кружки указывают положение атомов дейтерия, черные большие кружки — атомов титана

с дейтронами мишени, пройдя при этом максимумы электронной плотности атомов титана. Для ориентации кристаллов с индексом Миллера  $[100]$  (см. рис. 1, *б*) ситуация обратная — все дейтроны мишени находятся в местах возможного каналирования падающих частиц.

Этот простой пример демонстрирует наличие зависимости выхода ядерной реакции от структуры мишени из дейтерида металла и способа его получения. Таким образом, ориентации кристаллов дейтерида титана  $[111]$  и  $[100]$ , при создании поликристаллических мишеней с газовой схемой наводороживания, будут представлены в равных долях. Для поликристаллических мишеней, дейтерирование которых получено путем имплантации дейтронов пучка, кристаллы мишени с ориентацией  $[111]$  будут обеднены дейтерием по сравнению с кристаллами, ориентированными в направлении  $[100]$ .

На рис. 2 представлены две проекции тетрагональной кристаллической решетки дидейтерида циркония  $\text{ZrD}_2$  в направлении  $[101]$  (рис. *a*) и в направлении  $[111]$  (рис. *б*). Видно, что в случае ориентации на рис. 2, *a* часть дейтронов находится в каналах, а другая часть затенена атомами циркония. В случае рис. 2, *б* все атомы дейтерия находятся в каналах.

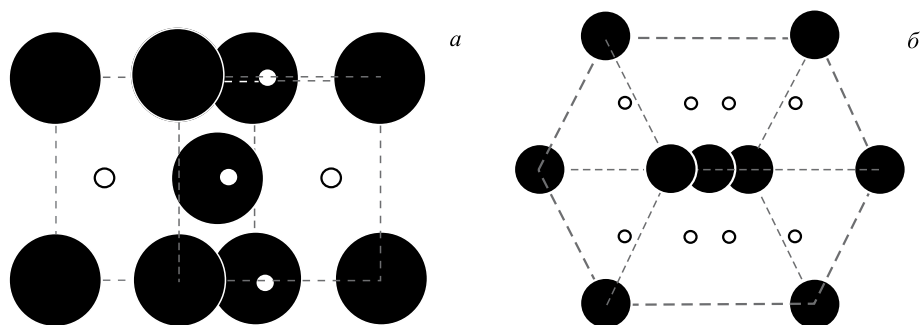


Рис. 2. Решетка  $\text{ZrD}_2$ : *a*) направление  $[101]$ ; *б*) направление  $[111]$ . Пустые маленькие кружки указывают положение атомов дейтерия, черные большие кружки — атомов циркония

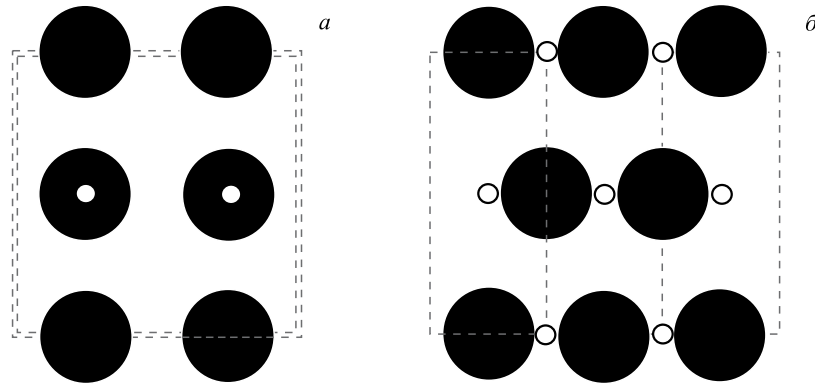


Рис. 3. Решетка  $NbD$ : *a*) направление  $[100]$ ; *б*) направление  $[101]$ . Пустые маленькие кружки указывают положение атомов дейтерия, черные большие кружки — атомов ниобия

На рис.3 представлены две проекции орторомбической кристаллической решетки дейтерида ниобия  $NbD$  — в направлении  $[100]$  (рис. *a*) и в направлении  $[101]$  (рис. *б*). Видно, что в случае текстуры  $[100]$  дейтерий оказывается затененным атомами ниобия, а в случае текстуры  $[101]$  атомы дейтерия расположены в каналах кристаллической решетки.

На рис.4 представлены две проекции кубической кристаллической решетки дидейтерида хрома  $CrD_2$ : в направлении  $[100]$  (рис. *a*) и в направлении  $[101]$  (рис. *б*). Видно, что в случае текстуры  $[100]$  дейтерий оказывается затененным атомами хрома, а в случае текстуры  $[101]$  атомы дейтерия расположены в каналах кристаллической решетки.

Таким образом, для проверки гипотезы о существовании эффекта усиления  $dd$ -реакции за счет наличия эффекта каналирования дейтронов в кристаллах дейтерида титана необходимо изучить механизмы протекания данной реакции с использованием двух типов мишеней — с текстурами  $[100]$  и  $[111]$  для дидейтерида титана, с текстурами  $[101]$  и  $[111]$  для дидейтерида циркония, с текстурами  $[100]$  и  $[101]$  для дейтеридов хрома и ниобия.

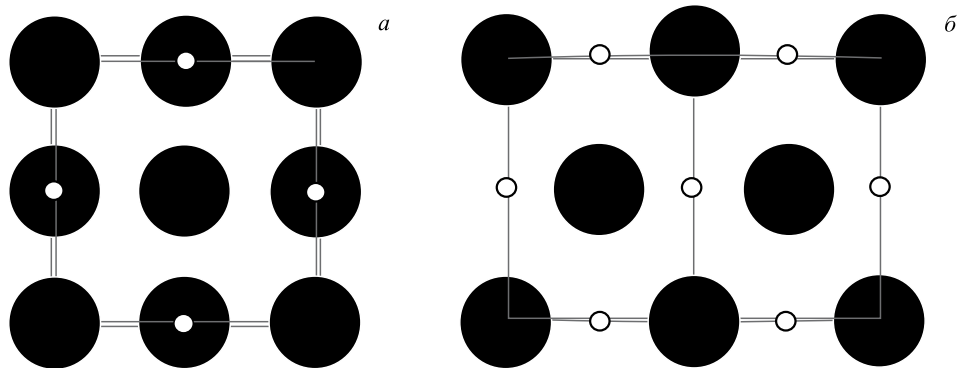


Рис. 4. Решетка  $CrD_2$ : *a*) направление  $[100]$ ; *б*) направление  $[101]$ . Пустые маленькие кружки указывают положение атомов дейтерия, черные большие кружки — атомов хрома

## МЕТОД МАГНЕТРОННОГО РАСПЫЛЕНИЯ МЕТАЛЛОВ

Технология магнетронного распыления металлов в среде химически активного плазмообразующего газа открывает возможности получения широкого спектра нитридов, оксидов и дейтеридов различных металлов. При этом, благодаря возможности плавного управления интенсивностью потока металла и большой выходной апертуре потока металла из магнетрона, можно получать однородные как по площади, так и по толщине покрытия из чистых металлов и их химических соединений. Для синтеза гидридов (дейтеридов) переходных металлов используют плазмообразующий газ, содержащий 20 об. % водорода (дейтерия) и 80 об. % плазмообразующего газа — аргона. Для обеспечения напыления на подложку покрытия, содержащего максимально возможную для данного металла концентрацию водорода (дейтерия), снимают вольт-амперную характеристику магнетронного разряда при заданном давлении в вакуумной камере, имеющую  $N$ -образную зависимость тока разряда от приложенного напряжения. Рабочую точку процесса получения гидридов (дейтеридов) металлов выбирают на спадающем участке изменения тока разряда при увеличивающемся напряжении. При этом, благодаря особенностям плазмохимических процессов при магнетронном распылении металлов, практически весь распыленный металл вступает в реакцию с химически активным плазмообразующим газом — водородом (дейтерием). Толщина покрытия (в  $\text{мкг}/\text{см}^2$ ) рассчитывается по увеличению массы достаточно большого по площади образца, приходящейся на единицу его площади. При тщательном контроле технологических параметров процесса синтеза гидридов (дейтеридов) металлов — мощности в канале питания магнетрона и давлении газа в вакуумной камере — покрытие получается однородным по толщине. На рис. 5 приведен график изменения концентрации дейтерия (в атомных долях) по глубине покрытия из дейтерида титана. Для измерения распределения дейтронов по глубине мишени применяется метод дейтронов отдачи (ERD-метод) с использованием пучка альфа-частиц с энергией 2,3 МэВ, создаваемого с помощью ускорителя Ван де Граафа ОИЯИ [18]. Кроме этого, одновременно с регистрацией дейтронов отдачи детектируются альфа-частицы, рассеянные на ядрах мишени в заднюю полусферу (резерфордское рассеяние, RBS-спектр). Совместный анализ ERD- и RBS-спектров позволяет с высокой точностью определить распределение дейтронов и атомов примесей по глубине мишени.

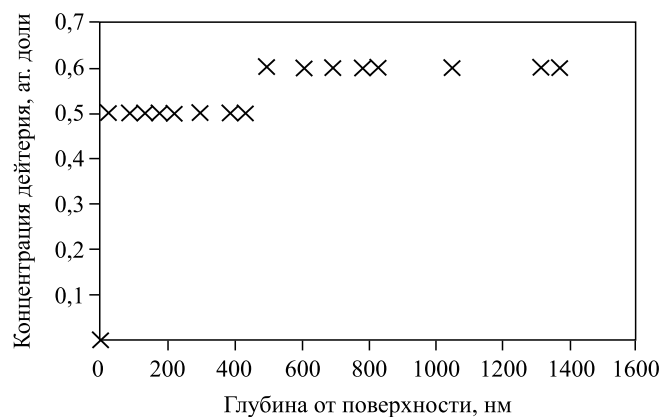


Рис. 5. Изменение концентрации дейтерия (в ат. долях) по глубине образца из дейтерида титана

### УСТАНОВКА И ТЕХНОЛОГИЯ НАНЕСЕНИЯ ПОКРЫТИЙ ИЗ ДЕЙТЕРИДОВ (ГИДРИДОВ) ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ

Установка для получения покрытий из дейтеридов переходных металлов работает следующим образом (рис. 6).

На поверхности барабана 4 диаметром 100 мм с помощью прижимов закреплены подложки — листы из нержавеющей стали в виде полированной фольги 5 толщиной 0,25 мм и размером  $100 \times 45$  мм — для нанесения на них покрытия. В магнетронах 6 размещены распыляемые мишени из того металла, дейтерид которого необходимо получить. Камера 1 магнетронной распылительной установки вакуумируется до давления остаточных газов  $5 \cdot 10^{-4}$  Па. После достижения указанного вакуума в объеме камеры производится напуск в нее плазмообразующего газа — смеси дейтерия с аргоном, с постепенным повышением давления смеси до  $10^{-4}$  Па. При этом давлении производится плазменная чистка поверхности подложки для удаления с ее поверхности остатков органических загрязнений. После проведения плазменной чистки давление смеси  $D_2 + Ar$  в камере повышают до  $1,5-1,8 \cdot 10^{-1}$  Па, и при вращающемся барабане 4, с размещенными на нем напыляемыми фольгами из нержавеющей стали, к магнетронам подводят мощность из такого расчета, чтобы весь распыленный металл вступил в химическую реакцию с дейтерием в плазмообразующем газе. Напыление производится при многократном (до 3000 раз) пересечении подложками 5 потоков металлосодержащей плазмы, формируемой магнетронами. За один оборот барабана 4 на поверхность подложки 5 наносится слой дейтерида (гидрида) металла толщиной менее 1 нм. Накопление одного за другим субнанометровых слоев дейтерида (гидрида) металла позволяет получить однородное по глубине покрытие из требуемого дейтерида. Камера 1 снабжена магнитной муфтой 3 для того, чтобы можно было передавать вращение от двигателя 2 барабану 4, обеспечивая при этом гер-

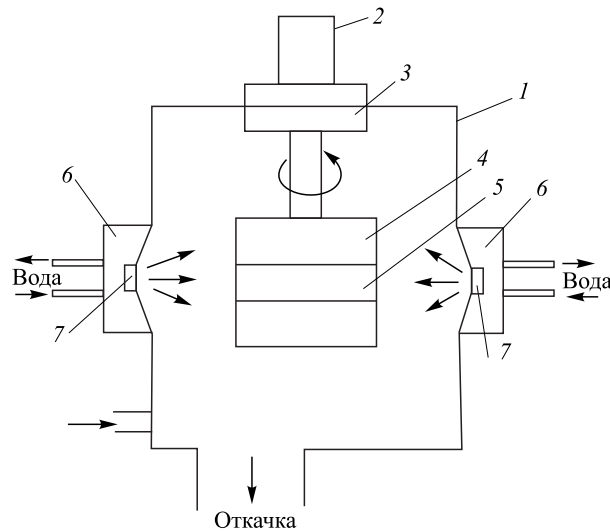


Рис. 6. Схема магнетронной установки для получения дейтеридов металлов: 1 — камера; 2 — двигатель; 3 — магнитная муфта; 4 — барабан; 5 — напыляемая лента; 6 — магнетроны; 7 — мишень из распыляемого вещества

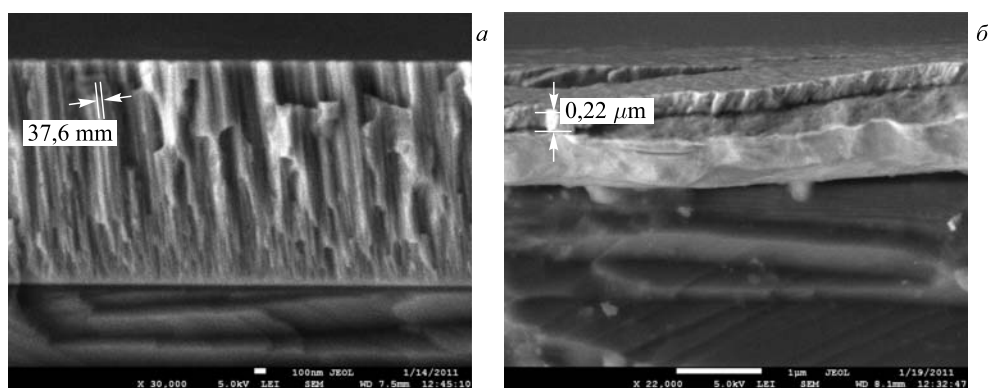


Рис. 7. Электронно-микроскопические снимки дейтеридов, полученные с использованием электронного микроскопа с автоэмиссионным катодом JEOL JSM7500F: а) циркония; б) титана

метичность камеры 1. Электронно-микроскопические исследования сколов, полученных с помощью магнетронного напыления покрытий (рис. 7), свидетельствует о том, что полученные покрытия представляют собой столбчатые кристаллиты дейтеридов металлов, упакованных параллельно друг другу.

При варьировании условий напыления дейтеридов титана, циркония и хрома путем изменения потенциала, подаваемого на напыляемую поверхность (потенциала смещения), а также при напылении специальных промежуточных слоев между подложкой и слоем дейтеридов указанных металлов удается управлять текстурой напыляемого дейтерида. Нами были получены: дейтерид титана  $TiD_2$  с текстурированностью [100] и [111] (рис. 8); дейтерид циркония  $ZrD_2$  с текстурированностью [111]; дейтерид ниобия с текстурированностью [111] и [101], а также в виде поликристалла; дейтерид хрома в виде поликристалла и с текстурированностью [100]. На рис. 8, а, в качестве примера, представлена фаза  $TiD_2$  с двумя пиками, соответствующими индексам Миллера [111] и [222], что свидетельствует о том, что покрытие имеет тотальную текстурированность в направлении [111]. На рис. 8, б, в качестве примера, представлена фаза  $TiD_2$ , имеющая пики с индексами [111] и [200], площади которых практически одинаковы. Так как соотношение между отражательными способностями плоскостей [111] и [200] составляет 10 : 4, то из этого следует, что 75 % кристаллитов дейтерида титана ориентированы в направлении [100] и только 25 % кристаллов имеют ориентацию [111].

Из анализа различных проекций кристаллических решеток перечисленных дейтеридов, представленных на рис. 1–4, следует, что нами отработана технология получения пленок из дейтеридов указанных металлов с требуемой текстурой кристаллов, согласно условиям проведения экспериментов по изучению  $dd$ -,  $pd$ - и  $d^3He$ -реакций, протекающих в них. Проведение  $dd$ -экспериментов с использованием созданных мишеней из  $TiD_2$  с практически 100 %-ми текстурами [100] и [111] позволит однозначно определить вклады эффектов каналирования и электронного экранирования в экспериментально наблюдающееся увеличение выхода нейтронов из реакции  $dd$ -синтеза.

Что касается проведения экспериментов по исследованию механизмов протекания  $dd$ -реакции в дейтериде циркония, то здесь не ожидается различия в выходах нейтронов при использовании мишеней с текстурами [100] и [111]. Дело в том, что для тетрагональной решетки дейтерида циркония  $ZrD_2$  практически все ориентации кристаллитов явля-

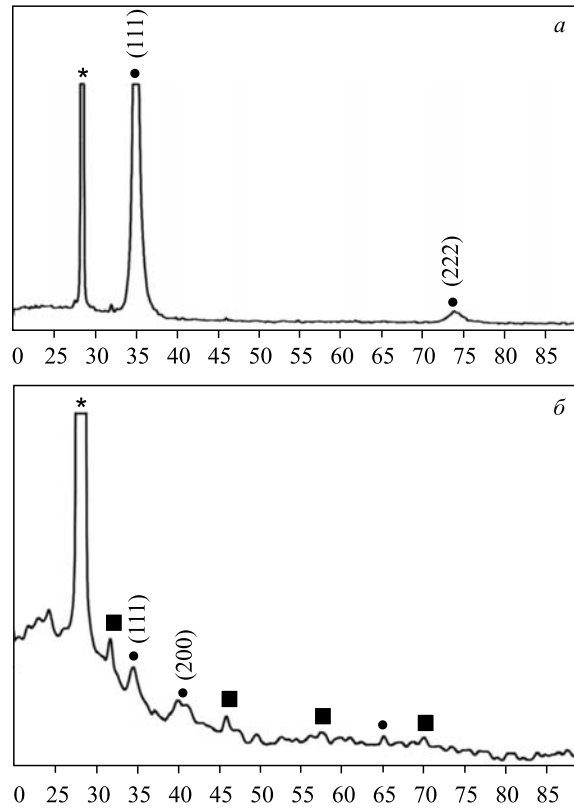


Рис. 8. Дифрактограммы дейтерида титана, имеющего преимущественную текстурированность в направлении [111] (а) и в направлении [100] (б). Здесь \* — Si; • —  $TiD_2$ ; ■ —  $Si_4H$

ются равноправными с точки зрения возможности взаимодействия дейтерия в решетке с дейтронами пучка. Дейтерий всегда находится либо в каналах, либо в положениях, близких к таковым. И только при переходе к другим фазам дейтеридов циркония —  $ZrD_{1,66}$  и  $ZrD_{1,5}$ , имеющим кубическую гранецентрированную решетку, возможна реализация условий для каналирования дейтронов при одной текстурированности кристаллитов и экранировки их атомами металла при другой текстурированности. Таким образом, при степени насыщения дейтерида титана дейтерием выше 1,66 мы имеем практически отсутствие затененности дейтронов атомами циркония и, как следствие, отсутствие эффекта электронной экранировки. Проведение данного типа исследований входит в программу наших дальнейших экспериментов по изучению  $dd$ -реакции в области ультранизких энергий.

Для полученных нами двух видов мишеней из дейтерида ниобия следует ожидать значительного увеличения выхода нейтронов в эксперименте с мишенью с текстурированностью [101] по сравнению с мишенью, имеющей текстурированность [100]. Для дейтерида хрома направление [100] является затеняющим, а так как в поликристалле встречаются все возможные ориентации кристаллитов, то для некоторых из них, например [101], атомы дейтерия будут находиться в каналах, и, как следствие, ожидаемый выход  $dd$ -нейтронов из поликристаллической мишени из дейтерида хрома должен быть выше, чем в случае использования аморфной мишени.



## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С целью изучения механизмов протекания ядерных реакций  $D(d, n)^3\text{He}$  и  $D(p, \gamma)^3\text{He}$  в области астрофизических энергий нами разработана и создана технология нанесения нанослоев из дейтеридов титана, циркония, ниобия и хрома на подложки из нержавеющей стали и кремния с использованием метода магнетронного распыления металлов. Данная технология позволяет корректно определить вклады процессов каналирования и электронного экранирования в эффект усиления выходов приведенных выше реакций в области ультранизких энергий.

Авторы работы искренне благодарны А. П. Кобзеву за проведение экспериментов по измерению распределения дейтронов по глубине мишеней из дейтеридов титана, циркония, ниобия и хрома.

Работа поддержана грантом полномочного представителя правительства Республики Польша в Объединенном институте ядерных исследований, грантом МОН РК 2023/ГФЗ, а также грантом РФФИ (проект № 14-22-03039).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Быстрицкий В. М. и др. Влияние кристаллической структуры дейтерированной мишени на выход нейтронов из  $dd$ -реакции при ультранизких энергиях // Письма в ЖЭТФ. 2014. Т. 99, № 9. С. 579–585.
2. Bystritsky V. M. et al. Experimental Verification of Hypothesis of  $dd$  Reaction Enhancement by Channeling of Deuterons in Titanium Deuteride at Ultralow Energies // Nucl. Instr. Meth. A. 2014. V. 764. P. 42–47.
3. Band 1: Plasmaphysik, Plasmadiagnostik, Analytik / Ed.: H. Frey. Düsseldorf: VDI-Verlag, 1995.
4. Wendt R., Ellmer K., Wiesemann K. Thermal Power at a Substrate during ZnO: Al Thin Film Deposition in a Planar Magnetron Sputtering System // J. Appl. Phys. 1997. V. 82, No. 5. P. 2115–2122.
5. Band 2: Verfahren und Anlagen / Eds.: G. Kienel, K. Röhl. Vakuumbeschichtung. Düsseldorf: VDI-Verlag, 1995.
6. Luyven Th. Dünnschichtsysteme für Low-E-Anwendungen: Der Einfluß des Sputterns auf Silberfilme in Mehrschichtsystemen. Dissertation. RWTH. Aachen, 1999.
7. Salinga Ch., Weis H., Wuttig M. Gasochromic Switching of Tungsten Oxide Films: A Correlation between Film Properties and Coloration Kinetics // Thin Solid Films. 2002. V. 414, No. 2. P. 288–295.
8. Stollenwerk J. Reaktives Sputtern von Oxidfilmen — Herstellung dielektrischer dünner Schichten für technische Anwendungen. Dissertation. RWTH-Aachen. Aachen, 1993.
9. Wendt R., Ellmer K. Desorption of Zn from a Growing ZnO:Al-film Deposited by Magnetron Sputtering // Surface Coatings Technol. 1997. V. 93, No. 1. P. 21–26.
10. Никитенков Н. Н. и др. Термостимулированная десорбция из образцов, насыщенных из водородной плазмы и электролитически // Взаимодействие ионов с поверхностью (ВИП-2009): Тр. XIX Междунар. конф., Звенигород, 21–25 августа 2009 г. М.: Галлеяпринт, 2009. Т. 1. С. 152–154.
11. Никитенков Н. Н. и др. Установка для исследования радиационного и термического выделения газов из неорганических материалов // ПТЭ. 2009. № 6. С. 110–115.

12. Хашихаи А. М. Исследование поведения водорода в нержавеющей стали при температурном и радиационном воздействии. Дис. . . . канд. техн. наук. Томск, 2010. 127 с.
13. Никитенков Н. Н. и др. Динамика накопления и радиационно-стимулированного выхода водорода из сталей // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2010. № 3. С. 71–75.
14. Teter D. F., Robertson I. M., Birnbaum H. K. The Effects of Hydrogen on the Deformation and Fracture of  $\beta$ -Titanium // Acta Mater. 2001. V. 49. P. 4313–4323.
15. Никитенков Н. Н. и др. Исследования накопления водорода в циркониевом сплаве методом термостимулированного газовыделения // Изв. Томск. политехн. ун-та. 2006. Т. 309, № 4. С. 52–55.
16. Баумбах Х. и др. Неравновесные системы металл–водород. Титан, нержавеющая сталь. Томск: Изд-во Томск. ун-та, 2002. 350 с.
17. Moller W., Borgesen P., Schrzer B. M. U. Thermal and Ion-Induced Release of Hydrogen Atoms Implanted into Graphite // Nucl. Instr. Meth. B. 1987. V. 19/20. P. 826–831.
18. Kobzev A. P. et al. Investigation of Light Element Contents in Subsurface Layers of Silicon // Vacuum. 2009. V. 83. P. 124.

Получено 23 июня 2015 г.