

УДК 539.16.04

ПРИМЕНЕНИЕ ТЕОРИИ МНОГОКРАТНОГО РАССЕЯНИЯ К ПРОЦЕССАМ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ЭЛЕКТРОНОВ С ВОДОРОДНОЙ ПОДСИСТЕМОЙ МЕТАЛЛОВ

Б.В. Горячев, В.В. Ларионов, С.Б. Могильницкий, Е.А. Складорова, И.П. Чернов

Томский политехнический университет

E-mail: msb@tpu.ru

Рассмотрено возбуждение водородной подсистемы металлов при их облучении электронами. Показано, что поглощение энергии внешнего воздействия зависит не только от микрофизических параметров элементов системы, но и от ее размеров и структуры, что может быть определяющим при оценке процессов, сопровождающих облучение. Обсуждается механизм увеличения энергии дейтронов. Увеличение энергии обеспечивается многократным рассеянием и переизлучением возмущения в виде плазмонов и осцилляций электронной плотности, распространяющихся по всей среде при радиационном внешнем воздействии.

Ключевые слова:

Облучение, электрон, возбуждение, многократное рассеяние, водород, металл.

Key words:

Radiation, electron, excitation, multiple scattering, hydrogen, metal.

Введение

Водород, введенный в металл, радикально меняет его свойства и образует подсистему, которая получила название водородной [1]. Исследованию процессов взаимодействия электронов с водородной подсистемой металлов посвящены работы [2, 3], в частности, выявлено, что посредством радиационного облучения, управляя концентрацией водорода в объеме твердых тел, можно создавать неравновесные термодинамические системы, синтез которых традиционными методами невозможен. Эти проблемы в последние годы стали актуальными для исследователей различных научных направлений, так как в этом случае удается достичь глубокой, управляемой перестройки металлов и сплавов на различных уровнях их строения.

В работах [4, 5] установлено, что при поглощении энергии радиационного воздействия водородной подсистемой палладиевой мишени, насыщенной изотопом водорода, атомы водорода интенсивно перемещаются по объему мишени и выходят за его пределы. Очень важно, что выход водорода по всему объему наблюдается даже тогда, когда радиационное воздействие осуществляется локально электронным лучом. Это означает, что взаимодействие внешнего излучения с водородной подсистемой носит коллективный характер, т. е. электронная подсистема палладия [6], обогащенного водородом, приобретает новую способность поглощать энергию внешнего электромагнитного воздействия и сохранять ее в течение более длительного времени, чем в чистом металле. Также выявлено, что если поверхность палладия покрыта пленкой окиси, которая легко пропускает электромагнитное воздействие, но тормозит десорбцию водорода (дейтерия), выходящие из мишени атомы дейтерия приобретают энергию до 4 эВ, что на два порядка выше средней энергии дейтронов при $T=300$ К. Это может быть объяснено тем, что электроны, входя в палладий, насыщенный дейтерием, возбуждают (генерируют) плазменные колебания

(плазмоны) в кристаллической решетке, локализованные преимущественно в окрестности атомов водорода.

Процесс осцилляции электронной плотности вызывает появление электрических полей ($E=10^8$ В/см) как в объеме, так и на поверхности металла в масштабах, соизмеримых с величиной параметра решетки 0,3...0,4 нм. Такое поле в решетке, наряду с высоким значением электронного потенциала экранирования в металлах из-за высокой подвижности дейтерия, в свою очередь, приводит к DD-реакции (реакция синтеза ядер дейтерия) при малой энергии возбуждения дейтеридов, что подтверждено регистрацией протонов с энергией до 3 МэВ [4].

Целью работы являлось: создание оптимальной конструкции мишени для увеличения энергии дейтронов при радиационном воздействии на мишень, и эффективного управления процессом увеличения энергии дейтронов.

Основные положения и понятия

К настоящему времени установлено, что плазменные колебания электронного газа твердых тел (плазмоны) ответственны за многие процессы, широко используемые на практике. В качестве примеров можно привести гигантское комбинационное рассеяние света [7], микроскоп на поверхностных плазмонах и т. д. В работе [8] предложена модель возбуждения поверхностными плазмонами атомов, движущихся вблизи поверхности металла. В этом случае осциллирующие дипольные и мультипольные моменты атомов дейтерия сильно связаны с коллективными поверхностными осцилляциями (КПО) электронов твердого тела.

В работах [9, 10] показано, что пространственная ограниченность рассеивающей среды не только изменяет количественные характеристики радиационного баланса, но и влияет на протекание физических процессов при взаимодействии излучения с веществом.

Экспериментальные и теоретические результаты

Поверхностные плазмоны образуются при прохождении пленок и отражении электронов с энергиями 0,5...30 кэВ от поверхностей. Если вероятность поглощения атомом плазмонов велика, то задача заключается в технической реализации условий, обеспечивающих создание наибольшей концентрации плазмонов и увеличение вероятности их рассеяния и поглощения в объеме. Вероятность перехода объемных плазмонов в поверхностные определяется состоянием совместной электронной системы палладия – дейтерий, которая зависит от вероятности возбуждения электронных состояний. Именно электронные состояния обеспечивают передачу и поглощение энергии первичного пучка электронов колебательным степеням свободы внутренней D-содержащей атмосфере кристалла.

Атомарный дейтерий имеет в металлах исключительно высокую подвижность, примерно на 10–15 порядков выше, чем подвижность тяжелых примесей при тех же температурах. В условиях облучения водородная атмосфера, находящаяся в твердом теле, переходит в неравновесное колебательное состояние. Это связано с тем, что локальные частоты D-содержащих связей лежат вне фононного спектра кристаллов и в процессе релаксации вынуждены генерировать 3–5 фононов, либо передать энергию по механизму диполь (квадруполь) – заряд электронной подсистеме твердого тела. Скорость таких процессов велика и до релаксации возбуждения D-содержащая связь способна совершить 10^5 – 10^6 колебаний. Неравновесное состояние внутренней водородной атмосферы создает благоприятные условия для колебательно-поступательного обмена (V–T обмена) и выхода дейтеридов из металла при облучении.

В этом случае смещение дейтерия из мест локализации становится термически неравновесным и стимулируется не энергией тепловых колебаний kT (k – постоянная Больцмана) в фононной подсистеме кристаллов, а энергией долгоживущих неравновесных колебательных возбуждений $\hbar\omega$ ($\hbar$ – постоянная Планка) в водородной атмосфере кристалла. Кроме того, в отличие от электронной, водородная подсистема способна сохранять подведенную энергию на время, достаточное для реализации процессов ускоренной диффузии. Способность запасать подводимую энергию на время 10^{-10} ... 10^{-11} с, значительно превышает время однофононной и электронной релаксации в металлах, равной 10^{-13} ... 10^{-14} с. В совокупности эти эффекты и способствуют образованию дейтронов высоких энергий.

Вероятность возбуждения атома, пересекающего поле поверхностного плазмона за время взаимодействия, можно рассчитать по формуле [8]:

$$P_{\sigma} = \frac{\pi E_0 \omega_p^4 (\mu_{\perp}^2 q^2 + \mu_z^2) l}{2 \hbar^2 \omega_0^2 \Delta \omega (\omega_p^2 + 2 \omega_0^2) v \cos \alpha} [1 - \exp(-2ql)] \Omega_0, \quad (1)$$

где E_0 – амплитуда электрического поля электромагнитной волны, связанной с коллективными осцилляциями электронов палладия (благодаря связи

атомов дейтерия с КПО, дейтерий поглощает плазмон); ω_0 – частота осцилляций поля поверхностного плазмона или электромагнитной волны, связанной с поверхностными плазмонами; ω_p – частота максимума распределения электронов; $\mu_{\perp}$ и μ_z – дипольные моменты атома (перпендикулярно и параллельно поверхности металла); q – волновое число; Ω_0 – диэлектрическая проницаемость в гидродинамическом приближении электронного газа; v – скорость движения атома дейтерия от поверхности палладия (рис. 1).

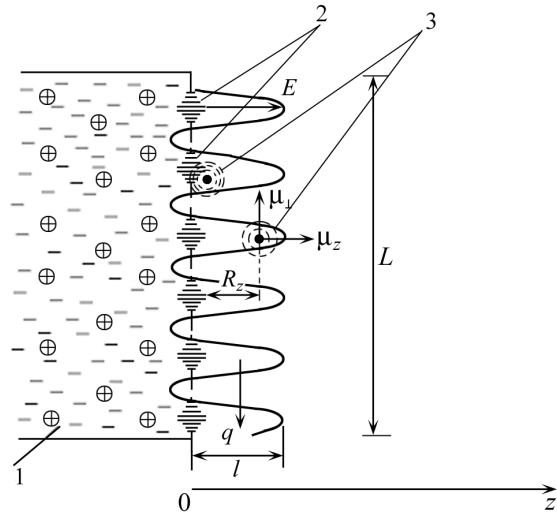


Рис. 1. Упрощенная схема взаимодействия атомных частиц с электромагнитной волной, связанной с КПО электронов металла: 1) металл; 2) КПО электронов; 3) дезорбируемые атомы с дипольными моментами $\mu_{\perp}$, μ_z ; E и q – электрический и волновой векторы электромагнитной волны, связанной с КПО электронов; R_z – расстояние от атома до поверхности; L и l – размеры полости, занимаемой электромагнитной волной

Среднее число плазмонов, взаимодействующих

с атомом дейтерия, равно $\bar{n} \cong \frac{AE_0^2}{2\hbar\omega_0} \Omega_0$, где A – размер

полости, содержащей поверхностные плазмоны [8].

В процессах генерации объемных плазмонов, резонансного усиления осцилляций электронной плотности, имеет значение соотношение между площадью пучка и площадью облучаемой электронами мишени, а также геометрические размеры слоя оксида и пластинки палладия, как факторов, влияющих на многократность рассеяния плазмонов [8]. Вследствие коллективного характера возбуждения и его распространения по всему объему происходит многократное переизлучение и рассеяние плазмонов, а также объемное возбуждение осцилляций электронной плотности дейтеридов палладия.

Повышение концентрации дейтронов, как центров поглощения и рассеяния энергии плазмонов, сопровождается увеличением энергии дейтронов, которое может быть вызвано двумя причинами: 1) увеличением количества рассеивающих (поглощающих) центров; 2) возрастанием рассеивающего и поглощающего объема среды и интенсивности многократного рассеяния из-

лучения. Оба механизма являются однонаправленными, т. е. их действие приводит к росту энергии дейтронов. При дальнейшем возрастании концентрации начинают развиваться эффекты «концентрационного» гашения, которые приводят к уменьшению энергии, вследствие деградации энергии плазмонов по механизму внутренней конверсии [8]. Однако в определенных случаях действует механизм пространственной ограниченности, при котором создается поле многократно рассеянного излучения, величина которого растет пропорционально рассеивающему плазмону объему.

Рассеивающий объем по своим микрохарактеристикам либо увеличивает выход дейтронов с высокими энергиями, либо ведет к гашению этого процесса за счет «преждевременного» ухода плазмонов из объема. В зависимости от концентрации дейтерия в гетероструктуре и ее объема возможно появление тушения процесса или увеличение энергии дейтронов (одно- или противонаправленные процессы). Техническое решение задачи, следовательно, состоит в нахождении оптимальных соотношений между размерами гетеросреды в продольном и поперечном направлениях, составом и структурой ее слоев, и энергией электронов.

При рассмотрении поглощения внешнего излучения плазмонами, используем модель рассеивающей среды с равномерно распределенными по объему центрами [9, 10], которые переизлучают плазмоны с вероятностью выживания кванта $\Lambda = 1 - P_0$. Такое возмущение распространяется по объему, а энергия плазмона изменяется в зависимости от размеров объема. В связи с этим, становится объяснимым влияние слоя оксида палладия, который наносится на поверхность металла, и, тем самым, влияет на «эффективный объем», где происходит переизлучение и образование плазмонов с большей энергией.

Среду «палладий – оксид палладия», насыщенную дейтерием, рассматриваем как рассеивающую и поглощающую, в которой распространяются объемные и поверхностные плазмоны. Количественное описание модели дано в [9, 10], а величина энергии, поглощенной объемом среды, определяется по формуле

$$I_A = \frac{I_P P_0}{P} \left[\eta + \beta + 4\mu \left(\frac{1 - 2\mu + 2\mu F_0}{P_0} \right) F_1 \right], \quad (2)$$

где параметры η , β , μ – характеризуют рассеяние плазмонов в направлениях $\pm x$, $\pm y$, $\pm z$ при падении излучения по оси $+x$, с условием нормировки

$$\eta + \beta + \sum_{i=1}^4 \mu_i = 1, \quad \tau - \text{«оптический» размер среды,}$$

объем которой определен как $V = \tau_x \tau_y \tau_z$; P_0 вычисляется по формуле (1). При облучении среды потоком излучения $I_0 = 1$ значение I_A определяет величину относительного поглощения. В формуле (2)

$$P = P_0 - 4\mu[2\mu\Lambda - P_0 + P_1 + (8\mu^2\Lambda F_0 / P_0)] \frac{F_1}{P_1};$$

$$P_1 = P_0 - 4\mu^2\Lambda \frac{F_0}{P_0}; \quad P_0 = 1 - \Lambda(\eta + \beta); \quad (3)$$

$$F_0 = 1 - \frac{(1 + R_0)[1 - \exp(-K_0\tau_y)]}{K_0\tau_y[1 + R_0 \exp(-K_0\tau_y)]}; \quad (4)$$

$$K_0 = \sqrt{P_0[1 - \Lambda(\eta + \beta)]}; \quad R_0 = \frac{K_0 - P_0}{K_0 + P_0}; \quad (5)$$

$$I_P = \frac{(1 - R)[1 - \exp(-K\tau_x)]}{1 + R \exp(-K\tau_x)}. \quad (6)$$

Вычисления K и R в (6) проводятся по формулам (5) с заменой P_0 на P_1 .

Зависимости величины относительного поглощения от объема V , рассчитанные по формулам (2–6), представлены на рис. 2.

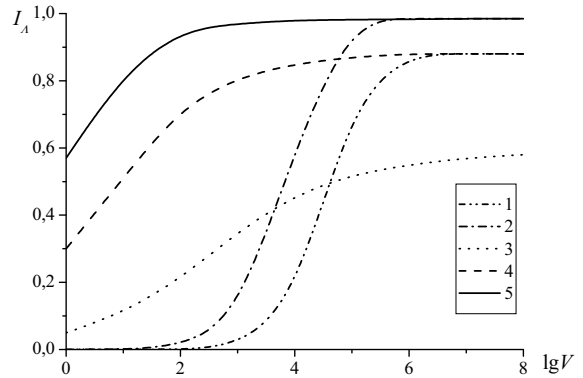


Рис. 2. Зависимость величины относительного поглощения энергии от объема мишени: 1, 2) среда в форме параллелепипеда; 3–5) кубическая форма; P : 1, 3) 0,1; 2, 5) 0,9; 4) 0,5

Результаты, рис. 2, показывают, что увеличение рассеивающего объема среды приводит к возрастанию относительного поглощения, причем диапазон изменения величины поглощения сильно зависит от формы среды.

Рост рассеивающего объема среды в форме параллелепипеда достигается путем увеличения его толщины. Все другие параметры среды и излучения в этом случае одинаковы. Для среды в форме параллелепипеда наблюдается значительный рост величины относительного поглощения в небольшом диапазоне изменения облучаемого объема среды, что существенно при конструировании мишеней. Следует отметить наличие насыщения величины относительного поглощения при увеличении рассеивающего объема мишени, что позволяет оценить предельные размеры мишени, при которых дальнейший рост толщины среды не приводит к увеличению выхода энергии из мишени.

При увеличении концентрации атомов дейтерия, поглощающих энергию внешнего воздействия, величина относительного поглощения возрастает. При концентрации больше некоторой пороговой, часть атомов не принимает участия в процессах поглощения и переизлучения. Одновременно с повышением концентрации происходит увеличение рассеивающего объема и коэффициента рассеяния, вследствие образования непоглощающих частиц; с другой стороны, чем больше рассеивающий объем, тем значи-

тельное с ростом P происходит изменение доли поглощенной энергии. В силу противонаправленности изучаемых процессов возможна ситуация, когда рост доли поглощенной энергии за счет увеличения объема (например, при увеличении концентрации атомов дейтерия) сопровождается ее убылью за счет уменьшения величины P . Это равнозначно «концентрационному» тушению реакции синтеза.

В процессе возбуждения водородной подсистемы металлов при их облучении электронами следует учитывать: 1) этап образования плазмонов; 2) условия рассеяния и поглощения плазмонов; 3) зависимость поглощенной энергии от объема среды; 4) эффект «тушения» переизлучения и поглощения плазмонов в зависимости от концентрации дейтронов.

В таблице приведены данные экспериментального исследования зависимости энергии дейтронов от параметров мишени. Описание методики и техники эксперимента приведены в работе [4]. Образцы Pd/PdO приготавливали путем термического окисления Pd фольги (99,5 % чистоты, Nilaso, Япония) толщиной 50 мкм, приводящего к образованию слоя PdO_y толщиной 10...30 нм в зависимости от времени окисления. Методика измерения толщины слоя оксида палладия дана в работе [11]. Насыщение образцов Pd/PdO дейтерием осуществляли с помощью электролиза в 0,3 М растворе LiOD в D₂O с Pt анодом при плотности тока 10 мА/см² и температуре ~279 К в ячейке с разделенными катодным и анодным пространствами.

Измерения содержания дейтерия в образце Pd/PdO:D_x с помощью анодной поляризации после действия пучка электронов в вакуумной камере при давлении $2,6 \cdot 10^{-5}$ Па в течение 50 мин. ($J=250$ нА, $E=30$ кэВ) показали, что поток десорбции дейтерия из образца равен $J_D \sim 3,3 \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$. Величина потока десорбции дейтерия в без стимуляции электронным пучком в 20 раз ниже.

Таблица. Влияние параметров мишени на энергию дейтронов

Площадь мишени, мм ²	200	50	300	100	300	300
Энергия электронов, кэВ	50	6	30	50	30	30
Толщина слоя PdO _y , мкм	0,00	0,00	0,01	0,02	0,02	0,03
Толщина слоя палладия, мкм	50	100	100	150	100	150
Средняя энергия дейтронов, эВ	0,20	0,26	0,26	0,40	3,60	4,20

Из приведенных в таблице параметров мишени следует, что «разогрев» атомов дейтерия до энергии более 4 эВ в объеме Pd/PdO:D_x мишени происходит при увеличении ее площади и при одновременном увеличении толщины слоя до 0,03 мкм. Энергия дейтронов зависит от соотношения толщины, площади мишени и увеличивается не пропорционально ее размерам. Эти данные соответствуют выводам, полученным из анализа кривых, рис. 2. При многократном рассеянии большую роль играет соотношение площади пучка и площади мишени. Следует также отметить, что для устойчивого получения потока «горячих» дейтронов слой оксида палладия не должен истощаться под действием пучка электронов.

Заключение

Показано, что поглощение энергии внешнего воздействия, а также изменение энергии дейтронов при их десорбции из наводороженного палладия зависит не только от микрофизических параметров элементов системы, но и от ее размеров и структуры. Это является определяющим при реализации процессов, сопровождающих десорбцию дейтерия. Увеличение энергии дейтронов обеспечивается многократным рассеянием и переизлучением возмущения в виде плазмонов и осцилляций электронной плотности, распространяющихся по всей среде при радиационном внешнем воздействии электронами.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Водород в металлах / под ред. Г. Алефельда и И. Фекля (пер. с англ. под ред. Ю.М. Когана). – М.: Мир, 1981. – Т. 1. – 475 с.; Т. 2. – 430 с.
2. Нечаев Ю.С. Характеристики гидридоподобных сегрегаций водорода на дислокациях в палладии // Успехи физических наук. – 2001. – Т. 171. – № 11. – С. 1251–1261.
3. Смирнов Л.И. Диффузия и закономерности поведения водородной подсистемы в системах металл-водород: автореф. дис. ... д.ф.-м.н. – Москва, 2003. – 38 с.
4. Липсон А.Г., Чернов И.П., Русецкий А.С., Цивадзе А.Ю., Ляхов Б.Ф., Черданцев Ю.П., Саунин Е.И., Саков Д.М., Тюрин Ю.И. Десорбция «горячих» атомов дейтерия из гетероструктуры Pd/PdO: D_x при возбуждении ее водородной подсистемы // Доклады РАН. – 2009. – Т. 425. – № 5. – С. 1–5.
5. Tyurin Yu.I., Chernov I.P. Non-equilibrium release of atomic hydrogen from metals under irradiation // Int. J. Hydrogen Energy. – 2002. – V. 57. – № 7–8. – P. 829–837.
6. Чернов И.П., Коротеев В.М., Гимранова О.М., Тюрин Ю.И. Роль водорода в процессах поглощения энергии ионизирующего излучения системой металл – водород // Поверхность. – 2007. – № 4. – С. 16–21.

7. Емельянов В.И., Коротеев Н.И. Эффект гигантского комбинационного рассеяния света молекулами, адсорбированными на поверхности металла // Успехи физических наук. – 1981. – Т. 135. – Вып. 2. – С. 345–367.
8. Никитенков Н.Н., Тюрин Ю.И., Колоколов Д.Ю., Шигалов С.Х. Модель возбуждения вторичных атомов поверхностными плазмонами // Известия Томского политехнического университета. – 2005. – Т. 308. – № 6. – С. 18–23.
9. Горячев Б.В., Ларионов В.В., Могильницкий С.Б., Савельев Б.А. К оценке отражательной и поглощательной способности пространственно ограниченных поглощающих и анизотропно рассеивающих сред // Теплофизика высоких температур. – 1988. – Т. 25. – № 5. – С. 1030–1032.
10. Горячев Б.В., Могильницкий С.Б. Влияние оптических размеров среды на выход люминесценции // Известия Томского политехнического университета. – 2005. – Т. 308. – № 5. – С. 62–64.
11. Lipson A.G., Heueser B.J., Castano C., Miley G., Liakhov B., Mitin A. Transport and magnetic anomalies below 70 K in a hydrogen-cycled Pd foil with a thermally grown oxide // Phys. Rev. B. – 2005. – V. 72. – № 21. – P. 1–4.

Поступила 08.06.2010 г.